



Universidade Federal Rural de Pernambuco
Pró-Reitoria de Pesquisa e Pós-Graduação
Departamento de Física
Programa de Pós-Graduação em Física Aplicada

Mistura de Quatro Ondas Degenerada na Linha D2 do Rubídio: Investigação Experimental e Modelagem Perturbativa

Wagner de Oliveira Albuquerque

Dissertação de Mestrado
Recife-PE
Julho de 2025

Universidade Federal Rural de Pernambuco
Pró-Reitoria de Pesquisa e Pós-Graduação
Departamento de Física
Programa de Pós-Graduação em Física Aplicada

Wagner de Oliveira Albuquerque

Mistura de Quatro Ondas Degenerada na Linha D2 do
Rubídio: Investigação Experimental e Modelagem
Perturbativa

Dissertação de mestrado submetida ao Programa de Pós-Graduação em Física Aplicada do Departamento de Física da Universidade Federal Rural de Pernambuco como requisito parcial para obtenção do grau de mestre em Física Aplicada.

Orientador: Prof. Dr. José Ferraz de Moura Nunes

Dissertação de Mestrado
Recife-PE
Julho de 2025

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação
Sistema Integrado de Bibliotecas da UFRPE
Bibliotecário(a): Auxiliadora Cunha – CRB-4 1134

A345m Albuquerque, Wagner de Oliveira.
Mistura de quatro ondas degenerada na linha D2 do Rubídio: investigação experimental e modelagem perturbativa / Wagner de Oliveira Albuquerque. – Recife, 2025.
69 f.

Orientador(a): José Ferraz de Moura Nunes Filho.
Co-orientador(a): Ammis Sánchez Alvarez.

Dissertação (Mestrado) – Universidade Federal Rural de Pernambuco, Programa de Pós-Graduação em Física Aplicada, Recife, BR-PE, 2025.

Inclui referências e apêndice(s).

1. Mistura de quatro ondas. 2. Óptica não linear. 3. Rubídio. 4. Equações ópticas de Bloch 5. Integração em velocidade. I. Nunes Filho, José Ferraz de Moura, orient. II. Alvarez, Ammis Sánchez, coorient. III. Título

CDD 621

Universidade Federal Rural de Pernambuco
Pró-Reitoria de Pesquisa e Pós-Graduação
Departamento de Física
Programa de Pós-Graduação em Física Aplicada

Wagner de Oliveira Albuquerque

Mistura de Quatro Ondas Degenerada na Linha D2 do
Rubídio: Investigação Experimental e Modelagem
Perturbativa

Dissertação de mestrado julgada adequada para
obtenção do título de mestre em Física Aplicada
e aprovada por unanimidade em 04 de julho de
2025 pela comissão examinadora.

Comissão Examinadora

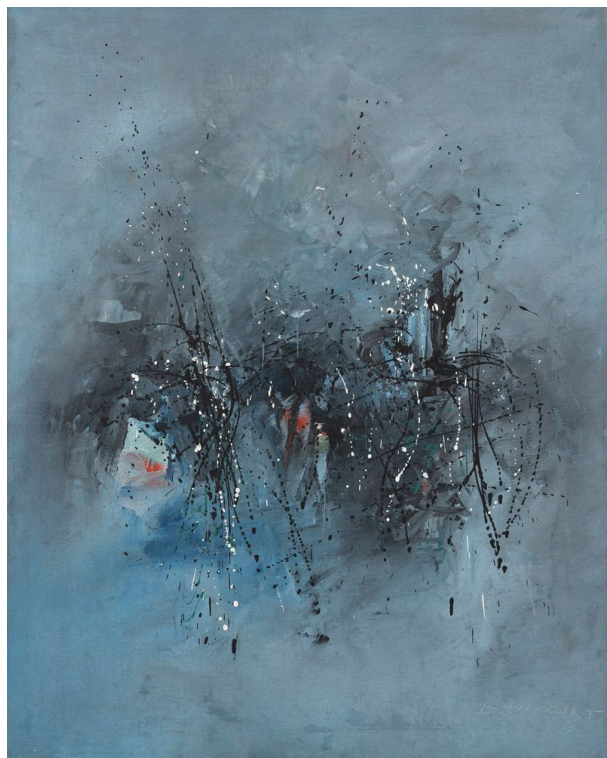
Prof. Dr. José Ferraz de Moura Nunes
Orientador - DF/UFRPE

Dra. Ammis Sánchez Alvarez
Coorientadora - DF/UFRPE

Prof. Dra. Natália Rodrigues de Melo
Examinadora Interna - DF/UFRPE

Prof. Dra. Sandra Sampaio Vianna
Examinadora Externa - DF/UFPE

*Dedico este trabalho a todos que dedicam
suas vidas à busca pelo conhecimento,
acreditando que "a ciência é a ferramenta
pela qual a humanidade se perpetua,
transcendendo limites, reinventando o im-
possível e moldando um futuro eterno".*



Uma Paisagem, 1959

Óleo sobre tela, 100 x 81 cm

Acervo do Museu de Arte de São Paulo (MASP)

Antonio Bandeira

*"Hoc pronuntiatur: ego cogito, ergo sum, est omnium primum et certissimum, quod
cuilibet ordine philosophanti occurrat."*

*"Este princípio: Penso, logo existo, é o primeiro e mais certo que ocorre a qualquer um
que filosofe de maneira ordenada."*

René Descartes, *Principia Philosophiae* (1644)

Resumo

Resumo

Neste trabalho, realizamos um estudo experimental e teórico da Mistura de Quatro Ondas (MQO) na linha D2 em vapor atômico de rubídio. Analisamos diferentes parâmetros experimentais, como as intensidades dos feixes de excitação e a densidade atômica, influenciam a geração e as propriedades espectrais do sinal não linear. O sinal analisado foi aquele gerado na direção $2k_a - k_b$, detectado por meio de um fotodetector de avalanche após filtragem espacial de polarização. Foram obtidos perfis espectrais detalhados para os isótopos ^{85}Rb e ^{87}Rb , bem como medidas sistemáticas da amplitude e do perfil espectral do sinal em função da densidade atômica e das intensidades dos feixes de excitação. Observou-se, no caso do ^{85}Rb , a formação de um vale espectral em sua transição cíclica em altas densidades, interpretado como resultado de absorção do sinal gerado. Também foi verificada uma dependência quadrática da amplitude do sinal em relação à intensidade do feixe dominante, compatível com a natureza de terceira ordem do processo não linear. Além disso, identificou-se a existência de competição entre os feixes de excitação, com regimes nos quais o aumento da intensidade de um feixe leva à redução da eficiência do processo na direção observada. Do ponto de vista teórico, utilizamos o formalismo da matriz densidade em regime semi clássico e resolvemos perturbativamente as equações ópticas de Bloch até terceira ordem, incorporando a integração em velocidade para levar em conta o efeito Doppler. O modelo permitiu simular os perfis espectrais observados, com boa concordância qualitativa em relação aos dados experimentais. A análise conjunta permitiu uma caracterização abrangente dos mecanismos envolvidos na geração do sinal de MQO, ao mesmo tempo em que indicou a necessidade de refinamentos teóricos para descrever regimes de maior intensidade ou incluir mecanismos físicos adicionais ainda não contemplados.

Palavras-chave: Mistura de Quatro Ondas; Óptica Não Linear; Rubídio; Equações Ópticas de Bloch; Integração em Velocidade.

Abstract

Abstract

In this work, we present an experimental and theoretical study of Four-Wave Mixing (FWM) in the D2 line of rubidium atomic vapor. We analyzed how different experimental parameters, such as the intensities of the excitation beams and the atomic density, influence the generation and spectral properties of the nonlinear signal. The signal under investigation was that generated in the $2k_a - k_b$ direction, detected using an avalanche photodetector following spatial and polarization filtering. Detailed spectral profiles were obtained for the ^{85}Rb and ^{87}Rb isotopes, as well as systematic measurements of the signal amplitude and spectral shape as functions of atomic density and excitation beam intensities. For ^{85}Rb , a spectral dip was observed in its closed transition at high atomic densities, interpreted as a result of absorption of the generated signal. A quadratic dependence of the signal amplitude on the dominant beam intensity was also verified, consistent with the third-order nature of the nonlinear process. Additionally, competition between the excitation beams was identified, with regimes in which increasing the intensity of one beam led to a reduction in the efficiency of signal generation in the observed direction. From a theoretical perspective, we employed the density matrix formalism in the semi classical regime and solved the optical Bloch equations perturbatively up to third order, including velocity integration to account for the Doppler effect. The model successfully reproduced the observed spectral features with good qualitative agreement. The combined analysis provided a comprehensive characterization of the mechanisms involved in FWM signal generation, while also indicating the need for theoretical refinements to describe higher-intensity regimes or to include additional physical mechanisms not yet considered.

Keywords: Four-Wave Mixing. Nonlinear Optics. Rubidium. Optical Bloch Equations. Velocity Integration.

Lista de Figuras

Página

- 2.1 Esquema experimental para geração e detecção do sinal de MQO. O laser de diodo (780 nm) é ajustado em frequência via espectroscopia de absorção saturada usando uma célula auxiliar de Rb. O feixe principal passa por um isolador óptico (evitando retrorreflexões) e uma lâmina $\lambda/2$ para controle de polarização, sendo então dividido em componentes ortogonais E_a e E_b por divisores de feixe polarizantes (PBS). Uma máscara ajustável define o ângulo de cruzamento ($\theta \approx 4$ mrad) na célula principal de Rb aquecida ($80 - 100^\circ\text{C}$), onde o sinal de MQO é gerado na direção $2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$. Na detecção, uma íris é utilizada para filtrar espacialmente o sinal gerado, um PBS filtra componentes residuais, e um fotodetector de avalanche (APD) realiza a aquisição. 15
- 2.2 Linha D_2 para o átomo de ^{87}Rb e ^{85}Rb com a separação hiperfina [21,22] . 18
- 2.3 Esquema experimental da Espectroscopia de Absorção Saturada, mostrando o feixe forte (E_s) e o feixe fraco (E_w), que são colineares e contrapropagantes. 20
- 2.4 Espectro de absorção saturada para a linha D2 do átomo de rubídio. 21
- 2.5 Sinal de Mistura de Quatro Ondas para os isótopos ^{85}Rb e ^{87}Rb . Os círculos abertos representam os dados experimentais, enquanto as curvas rosas correspondem a um ajustes matemático seguindo um perfil Voigt. 22
- 2.6 Espectros de MQO obtidos para diferentes valores de densidade atômica, exibindo simultaneamente as ressonâncias de ^{85}Rb e ^{87}Rb . No gráfico, N é expresso em átomos/ cm^3 , representando a densidade total de átomos na célula, onde aproximadamente 72% correspondem ao isótopo ^{85}Rb e 28% ao isótopo ^{87}Rb 23
- 2.7 Espectro de MQO obtido para densidade atômica de $6.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$, destacando o vale centrado na transição cíclica de ^{85}Rb 24

2.8	Espectros do sinal de MQO para diferentes intensidades do feixe B, com $I_a = 440 \text{ mW/cm}^2$ e $N = 5 \times 10^{12} \text{ tomos/cm}^3$	25
2.9	Amplitude do sinal de MQO em função da intensidade do feixe B, evidenciando a competição entre os campos de excitação.	25
2.10	Espectros do sinal de MQO para diferentes intensidades do feixe A, mantendo $I_b = 50 \text{ mW/cm}^2$ e $N = 5 \times 10^{12} \text{ tomos/cm}^3$	26
2.11	Pico do sinal de MQO em função da intensidade do feixe A, exibindo um ajuste de lei de potência de grau 2 (curva) e dados experimentais (pontos).	27
3.1	(a) Configuração experimental da MQO e (b) direção de polarização dos feixes de excitação.	28
3.2	Transição fechada do ^{85}Rb com subníveis Zeeman. Fonte: Adaptado de [12]	29
3.3	Sistema de quatro níveis para o sinal com polarização circular a direita (a) e a esquerda (b).	30
3.4	Subníveis Zeeman	45
3.5	(a) Espectro de absorção saturada; (b) sinal experimental de MQO para as ressonâncias do ^{85}Rb e ^{87}Rb ; (c) sinal teórico correspondente. A janela na figura (c) corresponde ao sinal de MQO na ressonância ciclica do ^{87}Rb . . .	46
3.6	Espectros de Mistura de Quatro Ondas (MQO) para os isótopos ^{85}Rb (a-b) e ^{87}Rb (c-d). Subfiguras (a) e (c): dados experimentais. Subfiguras (b) e (d): modelos teóricos. Intensidades fixas dos feixes de bombeio: $I_b = 50 \text{ mW/cm}^2$, $I_a = 444 \text{ mW/cm}^2$	47
3.7	Amplitude do sinal de MQO em função da intensidade do campo A. Os pontos vermelhos correspondem ao modelo teórico e os pretos aos dados experimentais.	48
3.8	Amplitude do sinal de MQO em função da intensidade do campo B. Comparação entre modelo teórico (pontos pretos) e dados experimentais (pontos vermelhos).	49

Sumário

	Página
1 Introdução	11
2 Experimento	14
2.1 Montagem experimental	14
2.2 O átomo de rubídio	16
2.2.1 Átomo hidrogenoide e estrutura fina	16
2.2.2 Estrutura hiperfina	17
2.2.3 Estrutura Zeeman	19
2.2.4 Espectroscopia de absorção saturada	19
2.3 Resultados experimentais	21
2.3.1 Medidas de densidade	23
2.3.2 Medidas de intensidade	24
3 Modelo teórico	28
3.1 Sistema de quatro níveis na aproximação de dipolo elétrico	29
3.2 O formalismo de matriz densidade	32
3.3 Solução com expansão em série de matriz densidade	36
3.3.1 Solução de ordem zero	38
3.3.2 Solução de primeira ordem	39
3.3.3 Solução de segunda ordem	39
3.3.4 Solução de terceira ordem	41
3.4 Integração em velocidade	42
3.5 Conexão com as equações de Maxwell	43
3.6 Comparação teórico-experimental	45
4 Considerações finais	50
Referências Bibliográficas	52
A Código-fonte	56

Capítulo 1

Introdução

Nas últimas décadas, a evolução tecnológica tem avançado em ritmo acelerado, impulsionada sobretudo pelos constantes progressos na miniaturização de dispositivos eletrônicos e optoeletrônicos. Esse processo, frequentemente descrito pela Lei de Moore, prevê a duplicação do número de transistores em circuitos integrados aproximadamente a cada dois anos [1], resultando em dispositivos cada vez menores, mais rápidos e mais eficientes. No entanto, à medida que nos aproximamos dos limites físicos impostos pelas dimensões nanométricas, torna-se fundamental aprofundar a compreensão das interações entre a radiação eletromagnética e a matéria em escalas atômicas.

A miniaturização incessante das tecnologias não apenas demanda componentes mais compactos, mas também intensifica a relevância das interações atômicas e subatômicas. Em escalas onde os efeitos quânticos dominam o comportamento dos sistemas, as leis clássicas da física perdem sua aplicabilidade, e fenômenos como o tunelamento quântico, a superposição de estados e a interferência de fase tornam-se cruciais para o funcionamento eficiente e inovador dos dispositivos. Nesse contexto, o estudo das interações entre átomos e campos elétricos não se configura apenas como uma curiosidade científica, mas como uma necessidade fundamental para a continuidade do progresso tecnológico.

De modo geral, a resposta de um meio material ao interagir com um campo elétrico pode ser descrita pela polarização macroscópica induzida, dada por [2]:

$$\mathbf{P}(\omega) = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} \mathbf{E}(\omega) + \chi^{(2)} \mathbf{E}^2(\omega) + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3(\omega) + \dots \right), \quad (1.1)$$

onde ϵ_0 é a permissividade elétrica do vácuo e $\chi^{(n)}$ é a susceptibilidade de n -ésima ordem. A simetria do material exerce papel fundamental na forma de cada termo da série: em meios centrosimétricos, por exemplo, todas as susceptibilidades de ordem par ($\chi^{(2)}$, $\chi^{(4)}$, etc.) são nulas [2].

Quando a intensidade do campo aplicado é relativamente fraca, o termo de primeira ordem $\chi^{(1)}$ domina a dinâmica, descrevendo fenômenos lineares como a refração e a absorção. Entretanto, à medida que a intensidade do campo aumenta, torna-se impres-

cindível considerar os termos não lineares $\chi^{(2)}, \chi^{(3)}, \dots$, responsáveis por processos como geração de harmônicos, mistura de ondas e autofocalização.

O primeiro trabalho teórico nesse campo foi desenvolvido na década de 1930 por Maria Goeppert Mayer em sua tese de doutorado, onde foi proposto o fenômeno de absorção de dois fótons [3]. Entretanto, a comprovação experimental de efeitos ópticos não lineares só se tornou viável com o advento do laser em 1960, por Theodore Maiman e colaboradores [4]. Desde então, a área expandiu-se rapidamente, com a descoberta de diversos processos fundamentais, tais como geração de harmônicos [2], mistura de quatro ondas [5] e auto-focalização [6]. Tais fenômenos têm aplicações importantes em telecomunicações [7], processamento de sinais ópticos [8], geração de fontes coerentes de luz [9] e em técnicas de imagem médica [10]. Além disso, aplicações em informação quântica, como a geração de estados de fótons emaranhados, continuam a ser amplamente investigadas [11].

Nos últimos anos, diversos estudos têm sido conduzidos na área de óptica não linear, particularmente envolvendo mistura de quatro ondas (MQO). Trabalhos pioneiros como os de Barros et al. (2006) [12] e Ferraz et al. (2005) [13] estabeleceram bases importantes para o controle coerente em processos quânticos. Barros e colaboradores demonstraram como a manipulação de fase em pares de pulsos femtossegundos permite selecionar rotas quânticas específicas em transições de dois fótons em vapor de rubídio, eliminando interferências ópticas para isolar efeitos puramente quânticos. Paralelamente, Ferraz et al. exploraram interferência quântica em vapor atômico através de MQO com luz incoerente, mostrando como o controle de polarização permite distinguir e selecionar contribuições de diferentes caminhos quânticos.

Melo (2014) [14] examinou a MQO em vapor de rubídio com estados de Rydberg, analisando a resposta não linear em configurações colineares e de feixes cruzados, bem como o efeito de alargamentos de linha e deslocamentos em frequência. Esse trabalho evidenciou a influência tanto da densidade atômica quanto da intensidade dos feixes incidentes sobre o sinal gerado, considerando inclusive interferências destrutivas e efeitos de auto-alargamento. Mais recentemente, Baek et al. (2024) [15] investigaram sinais de MQO seletivos à polarização em sistemas multinível degenerados, aplicando espectroscopia de saturação em átomos de ^{85}Rb . Foi demonstrado que efeitos de rotação de polarização em processos não lineares podem ser controlados pela escolha adequada das polarizações dos feixes e pela geometria de propagação. Essa otimização é essencial para observar sinais específicos e seletivos, condição que viabiliza aplicações em processamento de informações quânticas e comunicações ópticas seguras.

Em um outro estudo Alvarez, Almeida e Vianna (2020) [16,17] exploraram sinais simétricos de MQO em vapor de rubídio conciliando resultados teóricos e experimentais. Os autores identificaram um pequeno deslocamento de frequência entre os picos, atribuído a efeitos de propagação e coerência, tais como a absorção induzida eletromagneticamente

(EIA). Observou-se a relevância das condições de casamento de fase e das variações no índice de refração do meio para a forma espectral e a intensidade dos sinais de MQO, mostrando como as interações de campos e coerências quânticas desempenham papel central na dinâmica do processo não linear.

Ainda Almeida e Vianna [18,19] estudaram a MQO em átomos frios utilizando, em seu experimento, como fonte principal, um único laser de transmissão contínua, configurado para gerar dois feixes ortogonais em polarização com intensidades similares. Durante o experimento, identificaram a presença de um vale característico no espectro do sinal de MQO, inicialmente atribuído a efeitos combinados de absorção e dispersão. Contudo, os modelos teóricos desenvolvidos indicaram que a principal causa do fenômeno era o armadilhamento coerente de população (CPT, do inglês *Coherent Population Trapping*), no qual os estados quânticos dos átomos se organizam de forma a minimizar as transições ópticas em determinadas condições de ressonância. Essa explicação forneceu um entendimento mais profundo das interações não lineares em sistemas de átomos frios, demonstrando a relevância de efeitos de coerência quântica na formação do sinal de MQO.

Inspirados por essas investigações, nosso trabalho foca na análise detalhada dos efeitos de propagação e nas características do meio que impactam a formação do sinal de MQO, com o objetivo de expandir o entendimento das condições sob as quais a coerência entre os níveis atômicos são moduladas. Pretendemos explorar como diferentes parâmetros, como a configuração geométrica dos feixes e a densidade atômica, influenciam a propagação do sinal gerado.

Inicialmente, no Capítulo 2, discutiremos o arranjo experimental empregado para a medição precisa do sinal de mistura de quatro ondas. Descreveremos os detalhes técnicos do setup experimental, incluindo a configuração dos feixes de laser com polarizações ortogonais E_a e E_b , e os dispositivos de detecção utilizados. Em seguida, abordaremos a escolha do meio atômico de rubídio, justificando sua seleção com base em suas propriedades ópticas e ressonâncias relevantes para o experimento, bem como a espectroscopia de absorção saturada, que foi empregada para calibração e caracterização do sistema.

No Capítulo 3, voltamos nossa atenção para o desenvolvimento do modelo teórico que descreve os principais comportamentos do sinal gerado. Esse modelo será apresentado com uma solução perturbativa das equações de população e coerência, que permite uma análise qualitativa dos efeitos de propagação e das interações entre os campos. A abordagem inclui a expansão da matriz densidade até terceira ordem e incorpora a integração em velocidade para considerar o efeito Doppler, conectando-se às equações de Maxwell para modelar a propagação do sinal gerado.

No Capítulo 4, abordaremos as conclusões finais e as perspectivas futuras para aprimorar o modelo, incluindo a consideração de efeitos de saturação e a investigação dos ângulos de cruzamento dos feixes, visando melhorar a descrição dos fenômenos em regimes de altas intensidades e densidades elevadas.

Capítulo 2

Experimento

Neste capítulo, apresentamos em detalhes a montagem experimental desenvolvida para a detecção do sinal de MQO investigado neste trabalho. Inicialmente, descrevemos o arranjo experimental utilizado na medição do campo gerado, incluindo os componentes ópticos e eletrônicos utilizados para assegurar a precisão e estabilidade das medidas. Em seguida, discutimos o meio não linear escolhido para o experimento, explorando suas propriedades e o papel que desempenha na geração do sinal de MQO. Por fim, abordamos a técnica de espectroscopia de absorção saturada utilizada, explicando como ela contribui para a caracterização do meio e a calibração dos parâmetros experimentais, destacando sua importância na obtenção de resultados precisos.

2.1 Montagem experimental

Como mostrado no esquema experimental da figura 2.1, utilizamos como fonte principal um laser de diodo de emissão contínua com comprimento de onda ajustável. Com o auxílio de um gerador de funções, o feixe foi sintonizado para varrer 1,8 GHz em frequência em torno da linha D2 do átomo de rubídio, correspondendo à transição entre o nível fundamental $5S_{1/2}$ e o nível excitado $5P_{3/2}$.

Inicialmente, o feixe atravessa um isolador óptico, um dispositivo eletro-óptico que permite a propagação em apenas um sentido, evitando retroreflexões e garantindo a estabilidade do laser de diodo utilizado no nosso sistema. Em seguida, ele passa por uma lâmina de microscópio que reflete aproximadamente 3% da sua potência para o experimento de absorção saturada, utilizado como um experimento auxiliar para o alinhamento e controle de frequência. A absorção saturada será explicada de forma mais detalhada posteriormente, abordando sua importância para garantir uma sintonização precisa e a estabilidade dos feixes no experimento.

Após atravessar a lâmina, o feixe transmitido incide em uma placa de meia onda, que ajusta sua polarização, resultando em duas componentes lineares ortogonais. Em seguida, o feixe atravessa um divisor de feixes por polarização (PBS), que o separa em dois

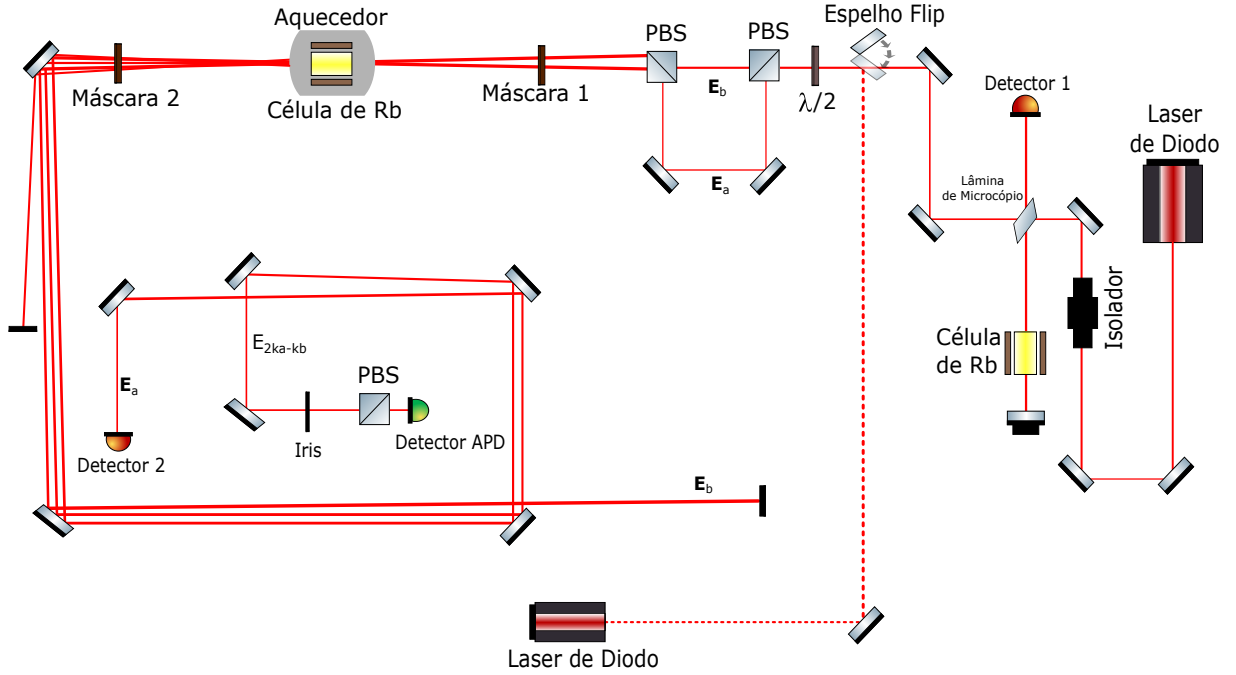


Figura 2.1: Esquema experimental para geração e detecção do sinal de MQO. O laser de diodo (780 nm) é ajustado em frequência via espectroscopia de absorção saturada usando uma célula auxiliar de Rb. O feixe principal passa por um isolador óptico (evitando retrorreflexões) e uma lâmina $\lambda/2$ para controle de polarização, sendo então dividido em componentes ortogonais E_a e E_b por divisores de feixe polarizantes (PBS). Uma máscara ajustável define o ângulo de cruzamento ($\theta \approx 4$ mrad) na célula principal de Rb aquecida (80 – 100°C), onde o sinal de MQO é gerado na direção $2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$. Na detecção, uma íris é utilizada para filtrar espacialmente o sinal gerado, um PBS filtra componentes residuais, e um fotodetector de avalanche (APD) realiza a aquisição.

feixes distintos — denominados feixe A e feixe B — correspondentes a cada componente de polarização. A separação espacial dos feixes é crucial para o experimento de mistura de quatro ondas, que é degenerado, ou seja, todas as frequências dos feixes interagentes coincidem. Dessa forma, é necessário que os feixes A e B sejam espacialmente distintos para que o sinal gerado possa ser detectado.

Conforme ilustrado na Figura 2.1, após a separação espacial dos feixes A e B, utilizamos uma máscara óptica que permite ajustar o ângulo de cruzamento entre os campos de excitação que incidem na célula de pirex. Esta célula é posicionada dentro de um aquecedor, que possibilita o controle da temperatura do meio atômico confinado, composto por átomos de rubídio — especificamente uma mistura natural dos isótopos ^{85}Rb (72%) e ^{87}Rb (28%). Nas seções seguintes, abordaremos em maior detalhe a escolha do átomo de rubídio para o experimento, discutindo suas propriedades e características que o tornam um meio ideal para estudos de interação não linear e mistura de quatro ondas.

O aquecimento da célula eleva a densidade de átomos na região de interação, a qual pode ser estimada pela expressão empírica proposta por A. Gallagher:

$$\log_{10}(N) = -\frac{A}{T} - (B + 1) \log_{10}(T) + C + 18,985, \quad (2.1)$$

onde N é a densidade de átomos em cm^{-3} , T é a temperatura em kelvin, e A , B e C são constantes ajustadas experimentalmente, cujos valores estão tabelados em Gallagher & Lewis, 1973 [20]. O termo 18,985 é um fator adicional que garante a correta correspondência numérica. Dessa forma, ao controlar a temperatura do vapor, torna-se possível regular a densidade de átomos na célula, aspecto fundamental para a otimização do sinal de mistura de quatro ondas.

Para o alinhamento do sinal gerado, utilizamos um laser auxiliar de diodo com potência fixa, que atua como guia. A direção de emissão de cada sinal é determinada pela conservação do momento linear dos campos que interagem com o meio não linear. Dessa forma, temos um sinal na direção $2\vec{k}_a - \vec{k}_b$ e outro na direção $2\vec{k}_b - \vec{k}_a$, onde $\vec{k}_a$ e $\vec{k}_b$ representam os vetores de onda dos feixes A e B. No experimento, os feixes de excitação A e B são quase copropagantes, formando entre si um ângulo de aproximadamente 4 mrad, o que possibilita a sobreposição eficiente desses campos dentro da célula de rubídio.

2.2 O átomo de rubídio

O rubídio utilizado em nosso experimento é um metal alcalino altamente reativo, com número atômico 37 e configuração eletrônica:

$$1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 4s^2 3d^{10} 4p^6 5s^1.$$

Analisando essa configuração, nota-se que o rubídio possui apenas um elétron de valência no orbital $5s$, enquanto os demais elétrons preenchem camadas internas de energia mais baixa. Esse único elétron de valência confere ao rubídio propriedades químicas típicas dos metais alcalinos, como alta reatividade e grande facilidade em perder o elétron externo para formar o cátion Rb^+ . Esse comportamento se deve à baixa energia de ionização do rubídio, característica dos elementos do grupo 1 da Tabela Periódica.

No contexto de nosso experimento, esse elétron de valência é o principal responsável pelas transições óticas de interesse, pois interage diretamente com a luz. Em particular, estaremos interessados na transição entre o estado fundamental $|5S_{1/2}\rangle$ e o estado excitado $|5P_{3/2}\rangle$, que compõe a chamada linha D_2 do átomo de rubídio, associada a um comprimento de onda de aproximadamente 780 nm. Essa radiação encontra-se na faixa do infravermelho próximo e visível, permitindo a utilização de lasers comerciais para manipulação e detecção dos átomos.

2.2.1 Átomo hidrogenoide e estrutura fina

Para descrever de forma aproximada os níveis de energia do elétron de valência do rubídio, pode-se considerar um modelo similar ao do átomo de hidrogênio (hidrogenoide), em que o potencial nuclear efetivo para o elétron mais externo é parcialmente blindado

pelos elétrons internos. No limite em que ignoramos correções como a interação spin-órbita, o hamiltoniano não perturbado do sistema (denotado aqui por $\hat{H}^{(0)}$) pode ser escrito de forma análoga ao átomo de hidrogênio, considerando apenas o termo cinético do elétron e o potencial coulombiano efetivo:

$$\hat{H}^{(0)} \approx -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla^2 - \frac{Z_{\text{ef}} e^2}{4\pi\epsilon_0 r},$$

em que m_e é a massa do elétron, ∇^2 é o operador laplaciano, Z_{ef} é a carga nuclear efetiva que o elétron de valência enxerga, r é a distância entre o elétron e o núcleo, ϵ_0 é a permissividade do vácuo e e é a carga fundamental.

Entretanto, para descrever adequadamente os níveis mais finos de energia do rubídio, precisamos levar em conta o acoplamento spin-órbita do elétron, o que introduz a estrutura fina. Essa estrutura deve-se essencialmente à interação entre o momento angular orbital $\vec{L}$ e o spin do elétron $\vec{S}$. O hamiltoniano que descreve a estrutura fina, em primeira ordem, pode ser escrito como [21, 22]:

$$\hat{H}_{SO} \propto \vec{L} \cdot \vec{S}.$$

A adição desse termo promove o desdobramento dos níveis atômicos, de modo que cada orbital nl (por exemplo, $5p$ no rubídio) se divide tipicamente em estados com valores diferentes de $J = L \pm \frac{1}{2}$, sendo $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. No caso específico do nível $5p$, obtemos os estados $5P_{1/2}$ e $5P_{3/2}$, que correspondem às conhecidas linhas de transição D_1 e D_2 dos átomos alcalinos.

2.2.2 Estrutura hiperfina

Para melhorar ainda mais a descrição das transições atômicas no rubídio, é necessário levar em conta a estrutura hiperfina, resultante principalmente da interação entre o momento magnético nuclear $\vec{I}$ e o momento magnético total do elétron $\vec{J}$. Nesses átomos de um elétron externo, o hamiltoniano total pode ser decomposto em:

$$\hat{H}_0 = \hat{H} + \hat{H}_{hf},$$

onde $\hat{H}$ representa o hamiltoniano que já inclui a interação spin-órbita (isto é, a estrutura fina), e $\hat{H}_{hf}$ é o termo de correção hiperfina, descrito em primeira ordem por [21, 22]:

$$\hat{H}_{hf} = A_h \vec{I} \cdot \vec{J},$$

sendo A_h a constante de acoplamento hiperfino (que depende do estado quântico, do núcleo e das propriedades magnéticas do elétron), $\vec{I}$ o momento angular nuclear e $\vec{J}$ o momento angular total do elétron (já considerando o acoplamento spin-órbita).

O produto escalar $\vec{I} \cdot \vec{J}$ expressa a interação magnética entre o núcleo e o elétron, causando um desdobramento adicional dos níveis de energia (estrutura hiperfina), que leva à definição de um novo momento angular total $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$. Usando as relações de acoplamento de momento angular, podemos reescrever:

$$\vec{I} \cdot \vec{J} = \frac{1}{2}(F^2 - I^2 - J^2),$$

obtendo-se:

$$\hat{H}_{hf} = \frac{A_h}{2}(F^2 - I^2 - J^2).$$

Assim, a energia hiperfina para um determinado valor de F é dada por:

$$E_F = \frac{A_h}{2}[F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)].$$

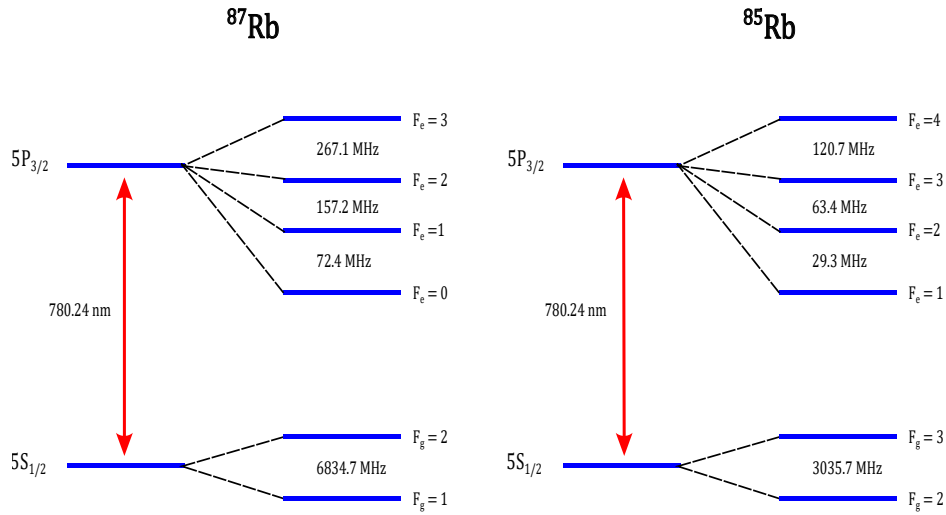


Figura 2.2: Linha D_2 para o átomo de ^{87}Rb e ^{85}Rb com a separação hiperfina [21,22]

Como mostrado na Figura 2.2, aqui F pode assumir valores inteiros que variam de $F = |I - J|$ até $F = I + J$. Portanto para o ^{87}Rb , que possui um núcleo com spin $I = \frac{3}{2}$, o estado fundamental $|5s_{1/2}\rangle$ é dividido em dois subníveis hiperfinos, com $F = 1$ e $F = 2$. A separação de energia entre esses níveis é caracterizada pela constante A_h , e a diferença correspondente em frequência é aproximadamente 6,835 GHz.

Nos estados excitados, como $|5p_{3/2}\rangle$, a interação hiperfina produz mais subníveis, com $F = 0, 1, 2, 3$, devido ao maior número de combinações possíveis de F . Para o ^{85}Rb , que possui um núcleo com spin $I = \frac{5}{2}$, o estado fundamental $|5s_{1/2}\rangle$ é dividido em dois subníveis hiperfinos, com $F = 2$ e $F = 3$. Já nos estados excitados do ^{85}Rb , como $|5p_{3/2}\rangle$, a interação hiperfina gera subníveis com $F = 1, 2, 3, 4$, já que o intervalo de F varia de

$|I - J| = \left| \frac{5}{2} - \frac{3}{2} \right| = 1$ até $I + J = \frac{5}{2} + \frac{3}{2} = 4$. Esses subníveis também apresentam uma separação em energia proporcional à constante hiperfina A_h para o estado excitado, mas os valores das separações diferem daqueles do ^{87}Rb devido à diferença no spin nuclear e nos valores de A_h .

Essas separações hiperfinas nos níveis excitados são geralmente menores do que no estado fundamental, mas ainda assim podem ser resolvidas experimentalmente com técnicas de espectroscopia de alta precisão como veremos mais adiante.

2.2.3 Estrutura Zeeman

Quando o átomo de rubídio é submetido a um campo magnético externo, ocorre uma interação entre o momento magnético total $\vec{F}$ do átomo e o campo aplicado, resultando no desdobramento dos níveis hiperfinos em subníveis Zeeman. Considerando um campo magnético fraco, a interação pode ser tratada como uma perturbação adicional:

$$\hat{H}_B = \mu_B g_F B \hat{F}_z,$$

onde μ_B é o magneton de Bohr, g_F é o fator de Landé total, B é a intensidade do campo magnético e $\hat{F}_z$ é a componente z de $\vec{F}$. O valor de g_F pode ser aproximado pela expressão [21, 22]:

$$g_F \approx g_J \frac{F(F+1) + J(J+1) - I(I+1)}{2F(F+1)},$$

onde g_J é o fator de Landé eletrônico. Assim, cada nível hiperfino F se desdobra em $2F + 1$ subníveis Zeeman, correspondendo a projeções m_F variando de $-F$ a $+F$. A separação de energia entre subníveis é linear em B e dada por:

$$\Delta E_{\text{Zeeman}} = g_F \mu_B B m_F.$$

No capítulo 3 deste trabalho veremos que mesmo na ausência de um campo magnético externo, é importante considerar os subníveis Zeeman devido às regras de seleção que governam as transições entre os estados atômicos. As regras de seleção determinam quais transições são permitidas com base nas mudanças nos números quânticos F e m_F , influenciando diretamente o espectro observado. A consideração dos subníveis Zeeman, mesmo sem a aplicação de um campo magnético, é crucial para a interpretação correta dos processos de absorção e emissão de radiação, bem como para a análise de fenômenos quânticos como coerência e emaranhamento de estados.

2.2.4 Espectroscopia de absorção saturada

Desenvolvida no início dos anos 1970, a técnica de absorção saturada é amplamente utilizada em espectroscopia devido à sua capacidade de superar as limitações do

alargamento Doppler [23]. Essencial para a calibração precisa de lasers, essa metodologia é frequentemente aplicada em vapores atômicos de metais alcalinos à temperatura ambiente, permitindo a resolução de transições hiperfinas inacessíveis à espectroscopia linear convencional [24].

O alargamento Doppler, causado pela distribuição de velocidades térmicas dos átomos em uma célula de vapor, mascara as transições hiperfinas no espectro de absorção. Esse efeito ocorre porque diferentes grupos de átomos, movendo-se em direções variadas devido ao movimento térmico, interagem com o feixe laser em frequências aparentes distintas. A sobreposição dessas contribuições deslocadas gera um espectro alargado, no qual as estruturas finas associadas às transições hiperfinas são mascaradas.

A técnica de absorção saturada supera esse problema ao utilizar dois feixes de laser colineares e contrapropagantes, mas com intensidades diferentes: o feixe forte (E_s), de maior intensidade, e o feixe fraco (E_w), de menor intensidade. Como mostrado na Figura 2.3, ambos os feixes interagem com o mesmo grupo de átomos dentro de uma célula de vapor. O feixe forte satura a transição dos átomos que estão em ressonância com a frequência do laser, reduzindo a sua absorção. Como esses átomos já estão saturados, o feixe fraco não é mais absorvido por eles, resultando em um pico estreito no espectro de absorção. Esse pico está localizado na frequência exata da transição ressonante e é livre do efeito Doppler.

Esse mecanismo baseia-se na seletividade dos feixes: apenas átomos cuja velocidade longitudinal é compatível com a frequência do laser sentem o mesmo efeito Doppler nos dois feixes. Por isso, o deslocamento Doppler é efetivamente anulado, permitindo que as transições hiperfinas sejam resolvidas com alta precisão. Essa técnica é amplamente utilizada em experimentos de precisão, como calibração de lasers e estudos detalhados de transições atômicas.



Figura 2.3: Esquema experimental da Espectroscopia de Absorção Saturada, mostrando o feixe forte (E_s) e o feixe fraco (E_w), que são colineares e contrapropagantes.

Além disso, a técnica de absorção saturada revela ressonâncias de crossover, que ocorrem devido à interação simultânea de ambos os feixes com átomos em movimento com velocidades intermediárias. Esses átomos percebem os deslocamentos Doppler opostos dos feixes forte e fraco, resultando em uma ressonância efetiva, mesmo que nenhum dos feixes individualmente esteja em ressonância direta com a transição atômica em repouso.

As ressonâncias de crossover aparecem entre as frequências das transições reais e são facilmente identificáveis no espectro. Em uma célula contendo átomos de rubídio

(^{87}Rb ou ^{85}Rb), esses picos surgem na metade da distância entre duas transições hiperfinas reais. Eles fornecem informações valiosas sobre as populações atômicas e as condições experimentais, como a intensidade dos feixes, a largura do laser e a pressão do vapor. Além disso, podem ser utilizados como referências adicionais para a calibração de lasers ou para o estudo da dinâmica dos átomos na célula de vapor.

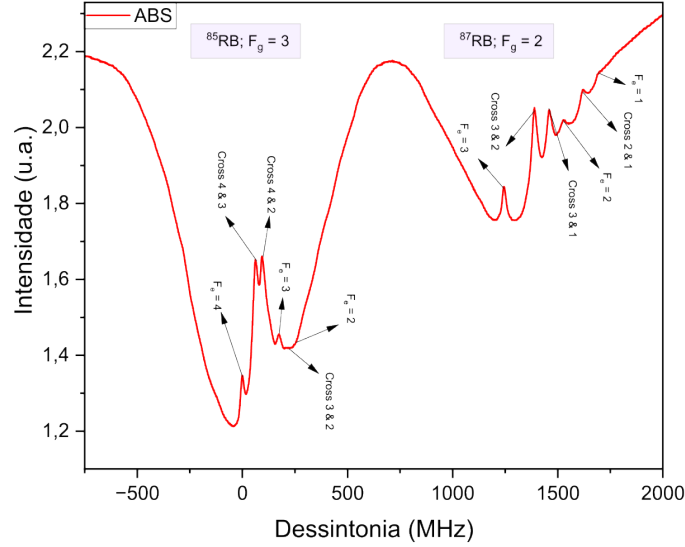


Figura 2.4: Espectro de absorção saturada para a linha D2 do átomo de rubídio.

Na Figura 2.4, é apresentado um espectro típico de absorção saturada para a linha D2 do átomo de rubídio. Para o ^{85}Rb , o espectro contém seis picos, correspondentes às transições $F_g = 3 \rightarrow F_e = 4, 3, 2$, bem como aos crossovers 4 & 2, 4 & 3 e 3 & 2, devido a limitações experimentais e à baixa probabilidade de transição, os picos referentes à transição $F_e = 2$ e ao crossover 3 & 2 não são tão evidentes no espectro. Já para o ^{87}Rb , o espectro também apresenta seis picos, que correspondem às transições $F_g = 2 \rightarrow F_e = 3, 2, 1$ e aos crossovers 3 & 1, 3 & 2, e 2 & 1.

2.3 Resultados experimentais

Nesta seção são apresentados os procedimentos e resultados obtidos na detecção e análise do sinal de Mistura de Quatro Ondas gerado em vapor atômico de rubídio. A medição do sinal na direção $2\vec{k}_a - \vec{k}_b$ foi realizada utilizando um fotodetector de avalanche APD431A (Si Fiber-Coupled Avalanche Photodetector, Thorlabs), cuja alta sensibilidade na faixa espectral empregada possibilitou a captura de sinais intrinsecamente fracos. Para garantir confiabilidade nos dados, foram aplicadas técnicas específicas de redução de ruído que maximizam a razão sinal-ruído.

Com o objetivo de suprimir interferências de luz transmitida diretamente pelos feixes incidentes, adotou-se uma filtragem óptica em múltiplas etapas. Inicialmente, posicionou-se uma íris ajustável no caminho óptico do feixe de MQO para selecionar espacialmente apenas a região central do feixe (onde o sinal é efetivamente gerado), bloqueando grande parte da luz dispersa. Um ajuste criterioso do diâmetro da íris foi necessário para equilibrar a atenuação de ruídos e a preservação do sinal. Em seguida, um cubo divisor de feixe por polarização (PBS) foi inserido após a íris, de modo a transmitir preferencialmente a polarização associada ao sinal de MQO e desviar outras componentes que não contribuíssem para o processo desejado.

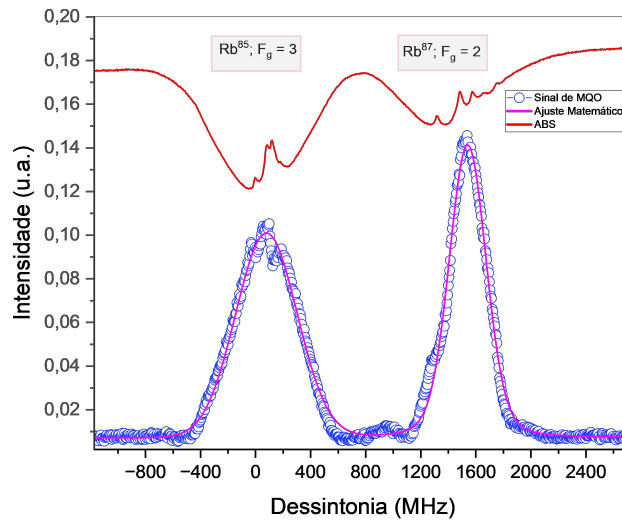


Figura 2.5: Sinal de Mistura de Quatro Ondas para os isótopos ^{85}Rb e ^{87}Rb . Os círculos abertos representam os dados experimentais, enquanto as curvas rosas correspondem a um ajustes matemático seguindo um perfil Voigt.

A Figura 2.5 apresenta o sinal de MQO medido para os isótopos ^{85}Rb e ^{87}Rb . Para as medições, fixaram-se as intensidades dos feixes de excitação (440 mW/cm^2 para o feixe A e 50 mW/cm^2 para o feixe B) e a densidade atômica em $N = 2.3 \times 10^{12} \text{ átomos/cm}^3$. A maior intensidade do feixe A em comparação ao feixe B justifica-se pela diferença nas ordens de interação: o feixe A interage em duas ordens, enquanto o feixe B interage em apenas uma. Como mencionado anteriormente, a célula contém uma mistura natural de átomos de rubídio (72,2% de ^{85}Rb e 27,8% de ^{87}Rb), sendo cada sinal associado exclusivamente a um isótopo devido à diferença em suas estruturas hiperfinas. Os círculos abertos representam os dados experimentais, e as curvas rosas são ajustes por meio de um perfil Voigt, dos quais se obtiveram as larguras a meia altura (FWHM) e as posições centrais dos picos. A escolha do perfil Voigt justifica-se por incorporar simultaneamente os alargamentos homogêneo (Lorentziano) e inhomogêneo (Gaussiano). A componente Lorentziana está associada a mecanismos como colisões atômicas e alargamento natural devido ao tempo de vida finito dos estados excitados, enquanto a componente Gaussiana

reflete principalmente o alargamento Doppler, decorrente da distribuição de velocidades dos átomos no vapor.

Os valores de FWHM encontrados foram de 525,6 MHz para ^{85}Rb e 317,7 MHz para ^{87}Rb , com posições centrais em 78,5 MHz e 1540,3 MHz, respectivamente. A maior largura de linha observada para ^{85}Rb em comparação com ^{87}Rb pode estar parcialmente relacionada à sua maior abundância natural na célula, o que favorece interações atômicas mais frequentes (e.g., colisões), ampliando a componente Lorentziana. Entretanto, diferenças intrínsecas entre os isótopos, como massas nucleares distintas e acoplamentos hiperfinos, também podem contribuir para essa disparidade.

2.3.1 Medidas de densidade

Para investigar o efeito da densidade atômica sobre o sinal de MQO, variamos a temperatura da célula contendo vapor de rubídio, mantendo constantes as intensidades dos feixes de excitação (440 mW/cm^2 para o feixe A e 50 mW/cm^2 para o feixe B) e o ângulo de cruzamento dos feixes em cerca de 4 mRad.

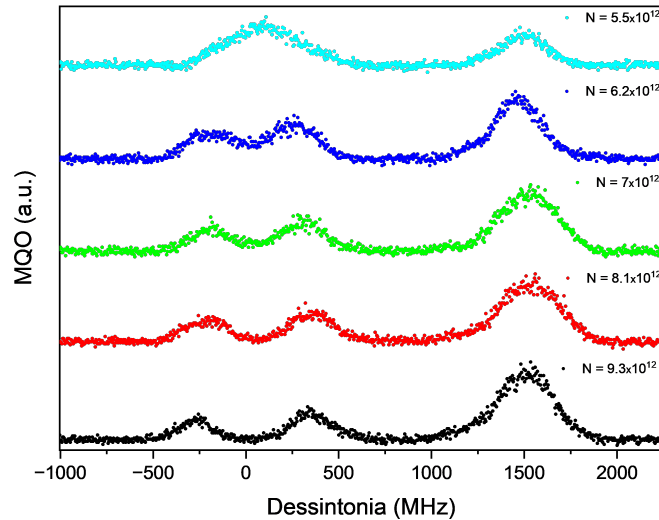


Figura 2.6: Espectros de MQO obtidos para diferentes valores de densidade atômica, exibindo simultaneamente as ressonâncias de ^{85}Rb e ^{87}Rb . No gráfico, N é expresso em átomos/ cm^3 , representando a densidade total de átomos na célula, onde aproximadamente 72% correspondem ao isótopo ^{85}Rb e 28% ao isótopo ^{87}Rb .

A densidade atômica foi estimada em átomos/ cm^3 com base na relação empírica de Gallagher [20], adequada à faixa de temperaturas utilizada.

A Figura 2.6 exibe os espectros de MQO obtidos para diferentes densidades atômicas. Observa-se que, à medida que a densidade aumenta, o sinal referente ao ^{85}Rb passa a exibir um vale cada vez mais pronunciado na região de sua transição cíclica, enquanto o sinal de ^{87}Rb não evidencia esse comportamento de forma tão marcante. Esse contraste

pode ser explicado pelo fato de a célula conter ambos os isótopos em proporção natural, o que implica maior abundância de ^{85}Rb e intensifica fenômenos de absorção nesse isótopo, cuja probabilidade de transição é maior.

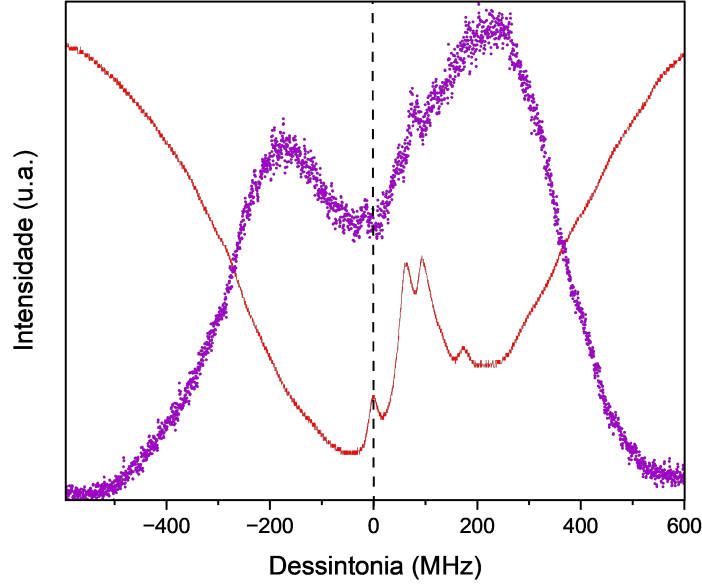


Figura 2.7: Espectro de MQO obtido para densidade atômica de $6.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$, destacando o vale centrado na transição cíclica de ^{85}Rb .

Para evidenciar mais claramente a posição central desse vale, a Figura 2.7 destaca a transição cíclica de ^{85}Rb . O efeito observado sugere um processo de reabsorção do sinal de MQO, fortemente acentuado para o isótopo de maior abundância. A análise detalhada dos mecanismos envolvidos nesse fenômeno será apresentada no capítulo 3, onde discutiremos, à luz do modelo teórico desenvolvido, de que forma as coerências atômicas geradas pelos feixes de excitação podem levar a tal comportamento.

2.3.2 Medidas de intensidade

A fim de investigar como a intensidade dos feixes de excitação influencia o processo de Mistura de Quatro Ondas (MQO), foram realizadas medidas variando-se inicialmente a intensidade do feixe B, enquanto se mantinham constantes $I_a = 440 \text{ mW/cm}^2$ e a densidade atômica em $N = 5 \times 10^{12} \text{ tomos/cm}^3$.

Figura 2.8 apresenta os perfis espectrais do sinal de MQO para diferentes valores de I_b . Observa-se que, conforme I_b aumenta, o sinal na ressonância de ^{85}Rb tende a crescer, ao passo que o vale correspondente diminui. Essa tendência era de se esperar, pois, à medida que a intensidade do feixe B se eleva, a interação entre os campos torna-se mais forte, o que, por sua vez, aumenta a intensidade do campo gerado reduzindo assim a

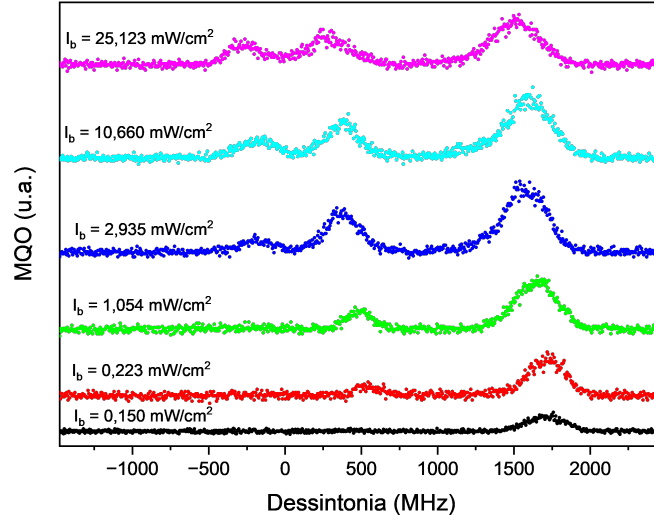


Figura 2.8: Espectros do sinal de MQO para diferentes intensidades do feixe B, com $I_a = 440 \text{ mW/cm}^2$ e $N = 5 \times 10^{12} \text{ tomos/cm}^3$.

absorção do sinal de MQO ao se propagar através do meio atômico. Para o sinal associado ao ^{87}Rb , também há um incremento geral conforme I_b se eleva.

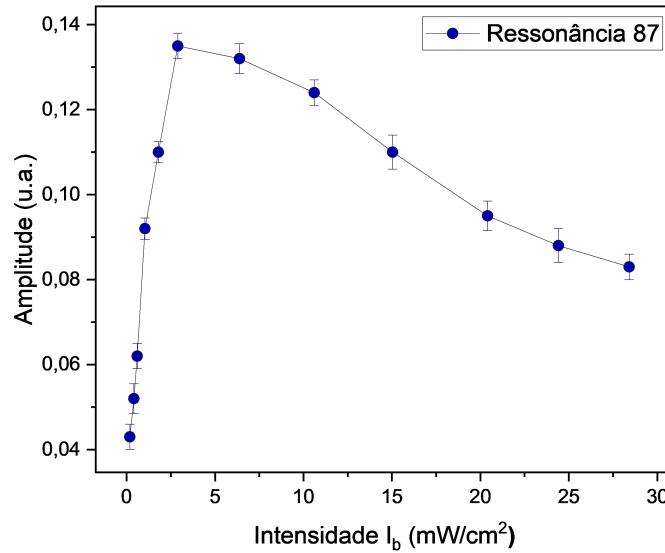


Figura 2.9: Amplitude do sinal de MQO em função da intensidade do feixe B, evidenciando a competição entre os campos de excitação.

Para acompanhar a evolução quantitativa desse processo, a Figura 2.9 exhibe a amplitude total do sinal de MQO em função de I_b . Em intensidades relativamente baixas, o pico associado ao ^{87}Rb cresce de modo aproximadamente linear. No entanto, a medida que a intensidade se aproxima de $I_b = 3 \text{ mW/cm}^2$, esse pico começa a diminuir, o que indica uma competição entre os feixes de excitação na região de interação. Conforme I_b

aumenta, pode-se reduzir a população disponível ao feixe A, limitando o ganho na direção $2k_A - k_B$ e, eventualmente, favorecendo o sinal de MQO na direção $2k_B - k_A$.

Em síntese, o simples aumento de I_b não acarreta uma elevação contínua da amplitude do sinal de MQO; em vez disso, a interação conjunta dos dois feixes determina o comportamento final. Uma vez compreendido o papel do feixe B, o estudo prossegue com a análise da intensidade do feixe A, a fim de elucidar como cada feixe contribui para a geração não linear.

Mantendo agora $I_b = 50 \text{ mW/cm}^2$ e a densidade em $N = 5 \times 10^{12} \text{ átomos/cm}^3$, variamos I_a . A Figura 2.10 apresenta os espectros do sinal de MQO para diferentes valores de I_a . Nota-se que, à medida que I_a cresce, toda a região espectral associada a ^{85}Rb e ^{87}Rb é intensificada, o que está de acordo com o fato de o campo gerado depender de duas contribuições do feixe A e apenas uma do feixe B.

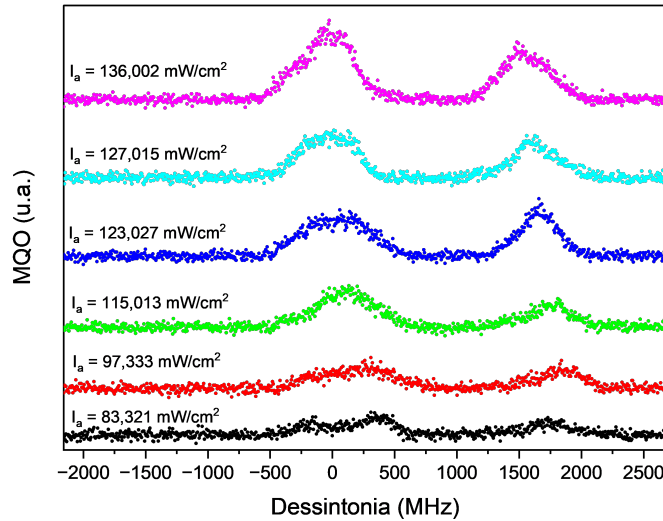


Figura 2.10: Espectros do sinal de MQO para diferentes intensidades do feixe A, mantendo $I_b = 50 \text{ mW/cm}^2$ e $N = 5 \times 10^{12} \text{ átomos/cm}^3$.

Para avaliar de maneira mais precisa o quanto o sinal cresce em função de I_a , analisamos o pico de MQO associado ao ^{87}Rb . A Figura 2.11 mostra esse pico em função de I_a , comparando dados experimentais (pontos) a um ajuste por lei de potência de grau 2 (curva). O comportamento quadrático encontrado é típico de processos não lineares de ordem superior, nos quais a eficiência do sinal cresce proporcionalmente à potência de dois (ou mais) campos de excitação.

Os resultados indicam que, embora o feixe B continue influenciando a dinâmica atômica, competindo por estados e modulando a resposta não linear, o feixe A possui papel determinante devido à sua presença dupla na combinação de campos. Assim, o sinal de MQO sofre um incremento significativo sob intensidades mais altas de I_a , aproximando-se de uma relação quadrática.

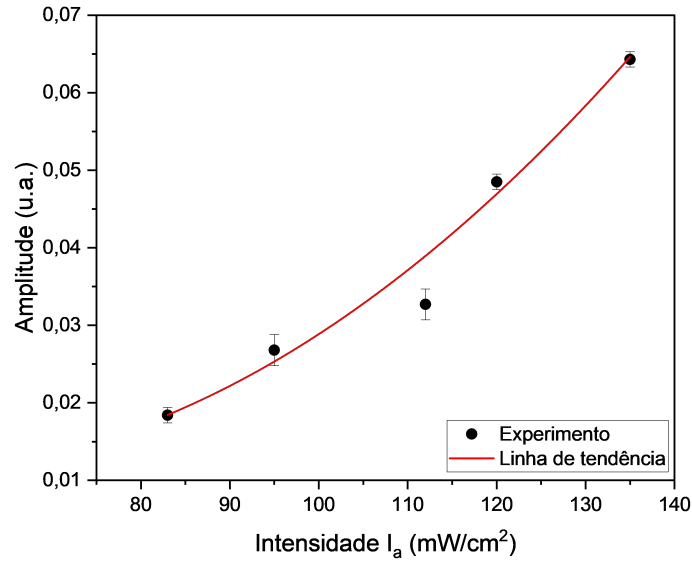


Figura 2.11: Pico do sinal de MQO em função da intensidade do feixe A, exibindo um ajuste de lei de potência de grau 2 (curva) e dados experimentais (pontos).

Os resultados experimentais apresentados evidenciam a relevância tanto da densidade atômica quanto das intensidades dos feixes A e B para otimizar e controlar o sinal de MQO. As conclusões realizadas aqui motivaram a análise teórica na próxima seção, na qual discutiremos como as coerências atômicas são moduladas pelos feixes de excitação e, assim, dão origem aos sinais de Mistura de Quatro Ondas analisados nesse trabalho.

Capítulo 3

Modelo teórico

Neste capítulo, apresentamos o modelo teórico desenvolvido para descrever os sinais de Mistura de Quatro Ondas (MQO) investigados neste estudo. Para capturar com precisão os fenômenos relevantes, adotamos uma abordagem semiclassica, que se mostra particularmente adequada ao nosso contexto. Essa escolha decorre da necessidade de quantizar o meio atômico, onde os efeitos quânticos desempenham um papel crucial, ao mesmo tempo em que tratamos os campos eletromagnéticos de modo clássico.

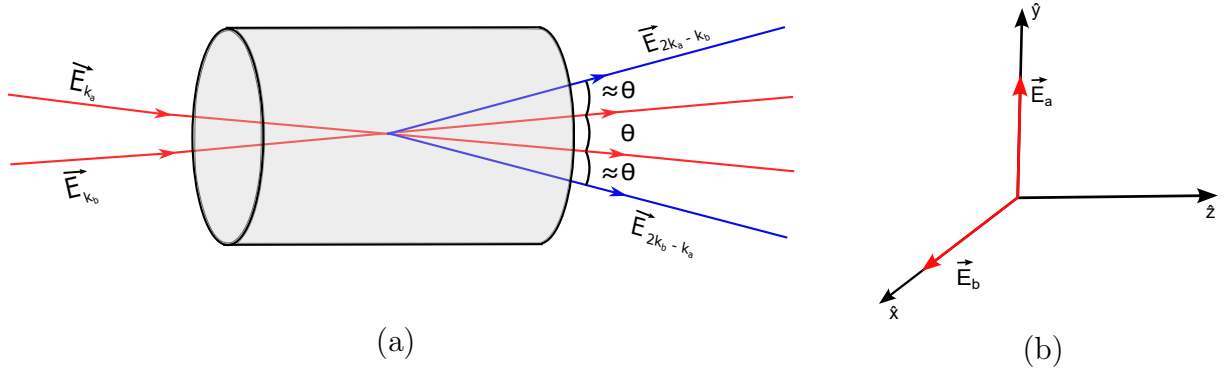


Figura 3.1: (a) Configuração experimental da MQO e (b) direção de polarização dos feixes de excitação.

No esquema simplificado da figura 3.1, os campos de excitação $\mathbf{E}_a$ e $\mathbf{E}_b$ possuem polarizações lineares e perpendiculares, de modo que podem ser expressos como combinações lineares de bases circulares:

$$\mathbf{E}_a = [\varepsilon_a(t)e^{-i(\omega_a t - k_a z)} + \text{c.c.}] \frac{(\hat{\sigma}^+ + \hat{\sigma}^-)}{\sqrt{2}} \quad (3.1)$$

$$\mathbf{E}_b = [\varepsilon_b(t)e^{-i(\omega_b t - k_b z)} + \text{c.c.}] \frac{(i\hat{\sigma}^+ - i\hat{\sigma}^-)}{\sqrt{2}} \quad (3.2)$$

Optamos por representar os campos em bases circulares para evidenciar como esses campos interagem com a estrutura Zeeman, gerando os campos $\mathbf{E}_{2k_a - k_b}$ e $\mathbf{E}_{2k_b - k_a}$ através do processo de mistura de quatro ondas.

Evidentemente, a maneira como esses campos interagem com a estrutura Zeeman depende da escolha do eixo de quantização do momento angular. Por exemplo, considerando que os campos possuem polarizações lineares e ortogonais, ao escolhermos o eixo de quantização na direção da polarização do campo $\mathbf{E}_a$, a regra de seleção nos diz que esse campo só poderá induzir transições do tipo π . Em contrapartida, o campo $\mathbf{E}_b$ será capaz de induzir transições do tipo σ .

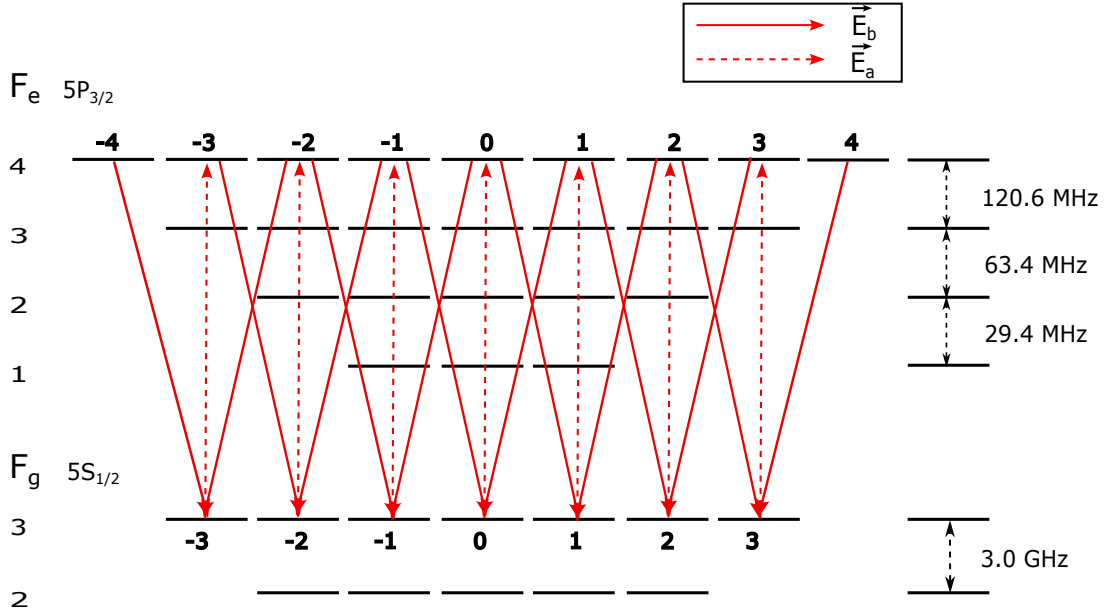


Figura 3.2: Transição fechada do ^{85}Rb com subníveis Zeeman. Fonte: Adaptado de [12]

Dessa forma, o sinal de MQO pode ser modelado a partir da contribuição de vários sistemas de quatro níveis do tipo **N** presentes na estrutura Zeeman [15, 19]. Para os cálculos, utilizaremos a transição fechada $F_g = 3 \rightarrow F_e = 4$ do ^{85}Rb como ponto de partida para nosso modelo. Os sinais associados às demais transições podem ser obtidos a partir da extrapolação da solução para a transição cíclica.

3.1 Sistema de quatro níveis na aproximação de dipolo elétrico

Conforme discutido anteriormente, o sinal da MQO é gerado a partir de várias contribuições de sistemas de 4 níveis ocorrendo simultaneamente na estrutura Zeeman. Portanto, o sistema básico que queremos modelar está representado na Figura 3.3. É sabido que o meio interage de forma aleatória com os campos de excitação de modo que dois sinal, espacialmente simétricos, são gerados, um na direção $2\vec{k}_a - \vec{k}_b$ e outra na direção $2\vec{k}_b - \vec{k}_a$. A figura 3.3 modela a situação na qual o meio interage com dois fótons do campo $\vec{E}_a$ e um fóton do campo $\vec{E}_b$ gerando o sinal degenerado com polarização circular a direita (a) e a esquerda (b).

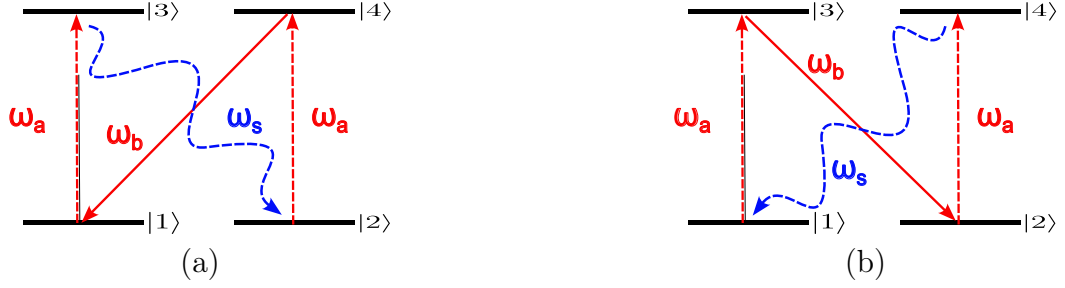


Figura 3.3: Sistema de quatro níveis para o sinal com polarização circular a direita (a) e a esquerda (b).

Considerando que os dois sistemas de quatro níveis são simétricos, resolveremos o problema adotando o sistema (b) como referência e, em seguida, extrapolaremos a solução para o sistema (a). O Hamiltoniano do sistema pode ser escrito como:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}(t), \quad (3.3)$$

onde $\hat{H}_0$ representa o Hamiltoniano do átomo livre, e $\hat{V}(t)$ descreve a interação entre o átomo e o campo eletromagnético. Escolhendo um referencial em que a energia dos estados fundamentais seja nula, o Hamiltoniano do átomo livre pode ser expresso como:

$$\hat{H}_0 = \sum_{i=3}^4 \hbar \omega_i |i\rangle \langle i|, \quad (3.4)$$

em que ω_i é a frequência natural atômica associada ao i -ésimo estado de energia.

Na aproximação de dipolo elétrico, o Hamiltoniano de interação é dado por:

$$\hat{V}(t) = -\vec{E}(z, t) \cdot \hat{\mu}, \quad (3.5)$$

onde $\vec{E}(t)$ é o campo elétrico e $\hat{\mu}$ é o operador de momento de dipolo elétrico, cujos elementos são dados por:

$$\mu_{ij} = \langle i | \hat{\mu} | j \rangle = \sum_{i,j} -e \langle i | \hat{r} | j \rangle = -e \int \psi_i^* \hat{r} \psi_j d^3r, \quad (3.6)$$

com $-e$ representando a carga do elétron e $\hat{r}$ sendo o operador de posição. Por simetria, os valores para os quais $\mu_{ij} \neq 0$ são:

$$\hat{\mu} = \sum_{i=3}^4 (\mu_{1i} |1\rangle \langle i| + \mu_{2i} |2\rangle \langle i| + H.c.) \quad (3.7)$$

em que μ_{1i} (μ_{2i}) é o momento dipolar da transição do estado fundamental $|1\rangle$ ($|2\rangle$) para o i -ésimo estado excitado $|i\rangle$.

Os campos que interagem no nosso sistema podem ser escritos como:

$$\vec{E}_a(z, t) = \vec{\varepsilon}_a(z, t) e^{i(k_a z - \omega_a t)} + c.c. \quad (3.8)$$

$$\vec{E}_b(z, t) = \vec{\varepsilon}_b(z, t)e^{i(k_b z - \omega_b t)} + c.c. \quad (3.9)$$

$$\vec{E}_s(z, t) = \vec{\varepsilon}_s(z, t)e^{i(k_s z - \omega_s t)} + c.c. \quad (3.10)$$

onde $\vec{E}_a(z, t)$ e $\vec{E}_b(z, t)$ são os campos de excitação e $\vec{E}_s(z, t)$ o campo gerado, cuja forma queremos modelar. Uma vez que o ângulo θ entre os campos de excitação é muito pequeno, desconsideramos a parte transversal dos campos, portanto fizemos $\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} \approx kz$ nas equações (3.8) - (3.10). Definindo $\vec{E}(z, t) = \vec{E}_a(z, t) + \vec{E}_b(z, t) + \vec{E}_s(z, t)$, podemos escrever a equação (3.5) da seguinte forma:

$$\hat{V}(t) = \sum_{i=3}^4 \left(\mu_{1i} E_{1i} |1\rangle \langle i| + \mu_{1i} \bar{E}_{1i} |1\rangle \langle i| + \mu_{2i} E_{2i} |2\rangle \langle i| + \mu_{2i} \bar{E}_{2i} |2\rangle \langle i| \right) + H.c.$$

por conveniência, utilizamos a definição da tabela 3.1 para o campo $\vec{E}_{1i}$ ($\vec{E}_{2i}$) que conecta o estado fundamental $|1\rangle$ ($|2\rangle$) ao i -ésimo estado excitado $|i\rangle$.

Em sistemas oscilatórios, a aproximação de onda girante (Rotating Wave Approximation, RWA) é amplamente utilizada para simplificar o hamiltoniano da interação [25]. Essa aproximação explora o fato de que, em muitos sistemas, as oscilações rápidas tendem a ter um efeito médio desprezível ao longo do tempo, enquanto as componentes de baixa frequência dominam a dinâmica efetiva da interação. Ao aplicá-la, eliminamos os termos rapidamente oscilantes, restando apenas as contribuições de frequências próximas à ressonância, simplificando significativamente o tratamento matemático e físico do sistema.

Consequentemente, utilizando a RWA, o hamiltoniano da interação, pode ser expresso da forma:

$$\hat{V}(t) = \hbar \sum_{i=3}^4 \left(\Omega_{1i} e^{i(\omega_{1i} t - k_{1i} z)} |1\rangle \langle i| + \Omega_{2i} e^{i(\omega_{2i} t - k_{2i} z)} |2\rangle \langle i| + H.c. \right), \quad (3.11)$$

onde definimos:

$$\begin{aligned} \hbar \Omega_{1i} &= \varepsilon_{1i} \mu_{1i}, & \hbar \Omega_{i1} &= \varepsilon_{i1} \mu_{i1}, \\ \hbar \Omega_{2i} &= \varepsilon_{2i} \mu_{2i}, & \hbar \Omega_{i2} &= \varepsilon_{i2} \mu_{i2}, \end{aligned} \quad (3.12)$$

a quantidade Ω_{1i} (Ω_{2i}) é conhecida como *frequência de Rabi* para a transição entre o estado fundamental $|1\rangle$ ($|2\rangle$) e o estado excitado $|i\rangle$. A frequência de Rabi representa a taxa com que a população oscila entre os estados envolvidos na transição devido a interação com o campo externo.

(i, j)	Ω_{ij}	ω_{ij}	k_{ij}
$(1, 3)$	Ω_{13}	ω_a	k_a
$(3, 1)$	$\bar{\Omega}_{13}$	ω_a	k_a
$(2, 4)$	Ω_{24}	ω_a	k_a
$(4, 2)$	$\bar{\Omega}_{24}$	ω_a	k_a
$(2, 3)$	Ω_{23}	ω_b	k_b
$(3, 2)$	$\bar{\Omega}_{23}$	ω_b	k_b
$(1, 4)$	$\bar{\Omega}_{41}$	ω_s	k_s
$(4, 1)$	Ω_{41}	ω_s	k_s

Tabela 3.1: Relação entre os índices, frequências de Rabi, frequências angulares e números de onda.

Dessa forma, o Hamiltoniano total pode ser reescrito como:

$$\hat{H}(t) = -\hbar \sum_{i=3}^4 (\Omega_{1i} e^{i(\omega_{1i}t - k_{1i}z)} |1\rangle\langle i| + \Omega_{2i} e^{i(\omega_{2i}t - k_{2i}z)} |2\rangle\langle i| + H.c.) + \hbar \sum_{i=3}^4 \omega_i |i\rangle\langle i|, \quad (3.13)$$

em sua forma explícita, o hamiltoniano total pode ser expresso da seguinte forma:

$$\hat{H}(t) = -\hbar \begin{pmatrix} 0 & 0 & \Omega_{13} e^{i(\omega_a t - k_a z)} & \Omega_{14} e^{i(\omega_s t - k_s z)} \\ 0 & 0 & \Omega_{23} e^{i(\omega_b t - k_b z)} & \Omega_{24} e^{i(\omega_a t - k_a z)} \\ \bar{\Omega}_{13} e^{-i(\omega_a t - k_a z)} & \bar{\Omega}_{23} e^{-i(\omega_b t - k_b z)} & -\omega_3 & 0 \\ \bar{\Omega}_{14} e^{-i(\omega_s t - k_s z)} & \bar{\Omega}_{24} e^{-i(\omega_a t - k_a z)} & 0 & -\omega_4 \end{pmatrix}. \quad (3.14)$$

3.2 O formalismo de matriz densidade

Para modelar o estado do sistema, utilizaremos o formalismo da matriz densidade. Em termos gerais, uma matriz densidade, ou operador densidade, é uma matriz auto-adjunta, semidefinida positiva e com traço igual a um [26]. Considerando um sistema com N componentes, onde uma fração N_i desses componentes assume os estados $|i\rangle$, com $i = 1, 2, 3, 4$, o operador densidade pode ser definido como:

$$\hat{\rho} = \sum_{i,j=1}^4 \rho_{ij} |i\rangle\langle j|, \quad (3.15)$$

onde ρ_{ii} representa a população no estado $|i\rangle$, ou seja, a probabilidade de encontrar o sistema no estado $|i\rangle$, enquanto ρ_{ij} (com $i \neq j$) representa a coerência entre os estados $|i\rangle$ e $|j\rangle$. As coerências ρ_{ij} medem o grau de superposição quântica entre esses estados, refletindo a interferência quântica e as correlações de fase entre eles.

Em sua forma explícita, o operador densidade que modela o sistema que estamos estudando pode ser escrito na forma matricial como:

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \rho_{13} & \rho_{14} \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{23} & \rho_{24} \\ \rho_{31} & \rho_{32} & \rho_{33} & \rho_{34} \\ \rho_{41} & \rho_{42} & \rho_{43} & \rho_{44} \end{pmatrix}. \quad (3.16)$$

No formalismo de matriz densidade, a evolução temporal do sistema é governada pela Equação de Liouville–von Neumann [26].

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}], \quad (3.17)$$

em que $\hat{H}$ é o Hamiltoniano total descrito pela equação (3.13) e $\hat{\rho}$ armazena informação do estado do sistema. Resolvendo a equação (3.17) a partir das definições considerada para os elementos de matriz densidade, chegamos à:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{11}}{dt} = & i(\Omega_{13}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{31} + \Omega_{14}e^{i(\omega_s t - k_s z)}\rho_{41} - \bar{\Omega}_{13}e^{-i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{13} \\ & - \bar{\Omega}_{14}e^{-i(\omega_s t - k_s z)}\rho_{14}), \end{aligned} \quad (3.18)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{22}}{dt} = & i(\Omega_{23}e^{i(\omega_b t - k_b z)}\rho_{32} + \Omega_{24}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{42} - \bar{\Omega}_{23}e^{-i(\omega_b t - k_b z)}\rho_{23} \\ & - \bar{\Omega}_{24}e^{-i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{24}), \end{aligned} \quad (3.19)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{33}}{dt} = & i(\bar{\Omega}_{13}e^{-i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{13} + \bar{\Omega}_{23}e^{-i(\omega_b t - k_b z)}\rho_{23} - \Omega_{13}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{31} \\ & - \Omega_{23}e^{i(\omega_b t - k_b z)}\rho_{32}), \end{aligned} \quad (3.20)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{44}}{dt} = & i(\bar{\Omega}_{14}e^{-i(\omega_s t - k_s z)}\rho_{14} + \bar{\Omega}_{24}e^{-i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{24} - \Omega_{14}e^{i(\omega_s t - k_s z)}\rho_{41} \\ & - \Omega_{24}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{42}), \end{aligned} \quad (3.21)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{12}}{dt} = & i(\Omega_{13}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{32} + \Omega_{14}e^{i(\omega_s t - k_s z)}\rho_{42} - \bar{\Omega}_{23}e^{-i(\omega_b t - k_b z)}\rho_{13} \\ & - \bar{\Omega}_{24}e^{-i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{14}), \end{aligned} \quad (3.22)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{34}}{dt} = & i(\bar{\Omega}_{13}e^{-i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{14} + \bar{\Omega}_{23}e^{-i(\omega_b t - k_b z)}\rho_{24} - \omega_3\rho_{34} - \Omega_{14}e^{i(\omega_s t - k_s z)}\rho_{31} \\ & - \Omega_{24}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{32} + \rho_{34}\omega_4), \end{aligned} \quad (3.23)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{13}}{dt} = & i(\Omega_{13}e^{i(\omega_a t - k_a z)}(\rho_{33} - \rho_{11}) - \Omega_{23}e^{i(\omega_b t - k_b z)}\rho_{12} + \Omega_{14}e^{i(\omega_s t - k_s z)}\rho_{43} \\ & + \rho_{13}\omega_3), \end{aligned} \quad (3.24)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{14}}{dt} = & i(\Omega_{14}e^{i(\omega_s t - k_s z)}(\rho_{44} - \rho_{11}) - \Omega_{24}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{12} + \Omega_{13}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{34} \\ & + \rho_{14}\omega_4), \end{aligned} \quad (3.25)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{23}}{dt} = & i(\Omega_{23}e^{i(\omega_b t - k_b z)}(\rho_{33} - \rho_{22}) - \Omega_{13}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{21} + \Omega_{24}e^{i(\omega_a t - k_a z)}\rho_{43} \\ & + \rho_{23}\omega_3), \end{aligned} \quad (3.26)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{24}}{dt} = & i(\Omega_{24}e^{i(\omega_a t - k_a z)}(\rho_{44} - \rho_{22}) - \Omega_{14}e^{i(\omega_s t - k_s z)}\rho_{12} + \Omega_{23}e^{i(\omega_b t - k_b z)}\rho_{34} \\ & + \rho_{24}\omega_4). \end{aligned} \quad (3.27)$$

Até o momento, consideramos que o átomo interage apenas com o campo eletromagnético. No entanto, segundo a teoria quântica de campos, o átomo também interage com as flutuações quânticas do campo de vácuo, que são responsáveis pelo decaimento espontâneo das populações no sistema. Esse efeito pode ser descrito como uma perda de coerência e de energia. Para incluir os efeitos de decaimento espontâneo, devemos adicionar as taxas de relaxamento nas equações acima.

Além disso, para simplificar equações diferenciais acima utilizamos a aproximação SVEA (slowly varying envelope approximation) [27], em que se presume que certas variáveis evoluem de forma muito mais lenta do que outras. Nesse contexto, a SVEA consiste em aproximar as variáveis do sistema por funções oscilantes com um fator exponencial que descreve a oscilação rápida e um fator mais lento relacionado à dinâmica do sistema, permitindo que as variáveis rápidas sejam separadas das variáveis lentas. Essa aproximação reduz a complexidade das equações diferenciais e facilita a análise do comportamento do sistema em escalas de tempo maiores.

$$\rho_{13} = \sigma_{13}e^{i(\omega_a t - k_a z)}, \quad \rho_{14} = \sigma_{14}e^{i(\omega_s t - k_s z)}, \quad (3.28)$$

$$\rho_{23} = \sigma_{23}e^{i(\omega_b t - k_b z)}, \quad \rho_{24} = \sigma_{24}e^{i(\omega_a t - k_a z)}, \quad (3.29)$$

$$\rho_{12} = \sigma_{12}e^{i((\omega_a - \omega_b)t + (k_b - k_a)z)}, \quad \rho_{34} = \sigma_{34}e^{i((\omega_a - \omega_b)t + (k_b - k_a)z)}, \quad (3.30)$$

ao aplicar a SVEA e adicionar as taxas de decaimentos, obtemos:

$$\frac{d\rho_{11}}{dt} = i(\Omega_{13}\sigma_{31} + \Omega_{14}\sigma_{41} - \bar{\Omega}_{13}\sigma_{13} - \bar{\Omega}_{14}\sigma_{41}) + \frac{\Gamma_3}{2}\rho_{33} + \frac{\Gamma_4}{2}\rho_{44} - \gamma_{\text{voo}}(\rho_{11} - \rho_{11}^{(0)}), \quad (3.31)$$

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = i(\Omega_{23}\sigma_{32} + \Omega_{24}\sigma_{42} - \bar{\Omega}_{23}\sigma_{23} - \bar{\Omega}_{24}\sigma_{42}) + \frac{\Gamma_3}{2}\rho_{33} + \frac{\Gamma_4}{2}\rho_{44} - \gamma_{\text{voo}}(\rho_{22} - \rho_{22}^{(0)}), \quad (3.32)$$

$$\frac{d\rho_{33}}{dt} = i(\bar{\Omega}_{13}\sigma_{13} + \bar{\Omega}_{23}\sigma_{23} - \Omega_{13}\sigma_{31} - \Omega_{23}\sigma_{32}) - (\Gamma_3 + \gamma_{\text{voo}})\rho_{33}, \quad (3.33)$$

$$\frac{d\rho_{44}}{dt} = i(\bar{\Omega}_{14}\sigma_{14} + \bar{\Omega}_{24}\sigma_{24} - \Omega_{14}\sigma_{41} - \Omega_{24}\sigma_{42}) - (\Gamma_4 + \gamma_{\text{voo}})\rho_{44}, \quad (3.34)$$

$$\frac{d\sigma_{12}}{dt} = i(\Omega_{13}\sigma_{32} + \Omega_{14}e^{i\Delta kz}\sigma_{42} - \bar{\Omega}_{23}\sigma_{13} - \bar{\Omega}_{24}e^{i\Delta kz}\sigma_{14}) - (\gamma_{12} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta)\sigma_{12}, \quad (3.35)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{34}}{dt} = & i(\bar{\Omega}_{13}e^{i\Delta kz}\sigma_{14} + \bar{\Omega}_{23}\sigma_{24} - \Omega_{14}e^{i\Delta kz}\sigma_{31} - \Omega_{24}\sigma_{32}) \\ & - (i\delta_a - i\delta_b + \gamma_{34} + \gamma_{\text{voo}})\sigma_{34}, \end{aligned} \quad (3.36)$$

$$\frac{d\sigma_{13}}{dt} = i(\Omega_{13}(\rho_{33} - \rho_{11}) - \Omega_{23}\sigma_{12} + \Omega_{14}e^{i\Delta kz}\sigma_{43}) - (\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)\sigma_{13}, \quad (3.37)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{14}}{dt} = & i(\Omega_{14}(\rho_{44} - \rho_{11}) - \Omega_{24}e^{-i\Delta kz}\sigma_{12} + \Omega_{13}e^{-i\Delta kz}\sigma_{34}) \\ & - (\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)\sigma_{14}, \end{aligned} \quad (3.38)$$

$$\frac{d\sigma_{23}}{dt} = i(\Omega_{23}(\rho_{33} - \rho_{22}) - \Omega_{13}\sigma_{21} + \Omega_{24}\sigma_{43}) - (\gamma_{23} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_b)\sigma_{23}, \quad (3.39)$$

$$\frac{d\sigma_{24}}{dt} = i(\Omega_{24}(\rho_{44} - \rho_{22}) - \Omega_{14}e^{i\Delta kz}\sigma_{12} + \Omega_{23}\sigma_{34}) - (\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)\sigma_{24}. \quad (3.40)$$

No sistema de equações acima, os termos Γ_3 e Γ_4 representam as taxas de decaimento das populações nos estados excitados. Já as taxas γ_{12} , γ_{34} , γ_{13} , γ_{14} , γ_{23} e γ_{24} estão associadas à perda de coerência quântica, descrevendo o decaimento das interferências entre os estados do sistema. Além disso, o termo γ_{voo} refere-se à taxa de entrada e saída de átomos na região de interação, associada ao movimento térmico dos átomos no vapor [19].

Os parâmetros δ_a e δ_b indicam os desvios de frequência (detuning) dos feixes A e B em relação às ressonâncias do sistema, enquanto Δ representa a diferença de frequência entre os campos de excitação. Por fim, o termo $\Delta k = 2k_a - k_b - k_s$ descreve a relação de fase entre os campos que interagem no sistema [19].

As equações (3.30) a (3.39) são conhecidas como as equações ópticas de Bloch e descrevem a evolução temporal das populações e coerências no sistema devido à interação com campos externos. Essas equações, em geral, não podem ser resolvidas de forma analítica devido à complexidade das interações. Suas soluções são tipicamente obtidas por métodos numéricos ou por aproximações perturbativas, como veremos na próxima seção.

3.3 Solução com expansão em série de matriz densidade

A resolução das equações de Bloch em sistemas de interação com campos externos é um tema amplamente estudado na literatura, com várias abordagens para a solução analítica ou numérica. Entre essas abordagens, a solução perturbativa tem sido frequentemente empregada, como discutido por Araújo e colaboradores [28, 29].

Em geral, resolver as equações de Bloch através do método de expansão em série de matriz densidade consiste em considerar o hamiltoniano da interação como sendo uma perturbação no sistema, isto é:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \lambda \hat{V}(t), \quad (3.41)$$

onde $\hat{H}_0$ é o hamiltoniano não perturbado e $\hat{V}(t)$ é o hamiltoniano perturbado, em que λ é o parâmetro da perturbação. Nessas condições, a matriz densidade pode ser expressa como uma serie de potências de λ da forma:

$$\hat{\rho} = \hat{\rho}^{(0)} + \hat{\rho}^{(1)}\lambda + \hat{\rho}^{(2)}\lambda^2 + \hat{\rho}^{(3)}\lambda^3 + \dots + \hat{\rho}^{(n)}\lambda^n, \quad (3.42)$$

em que $\hat{\rho}^{(0)}$ é a matriz densidade na ausência de campo eletromagnético e $\hat{\rho}^{(N)}$, com $N \geq 1$, é a correção de n-ésima ordem devido a interação com o campo externo. Em sua forma expandida, a matriz densidade de ordem N é dada por:

$$\hat{\rho}^{(N)} = \begin{pmatrix} \rho_{11}^{(N)} & \rho_{12}^{(N)} & \rho_{13}^{(N)} & \rho_{14}^{(N)} \\ \rho_{21}^{(N)} & \rho_{22}^{(N)} & \rho_{23}^{(N)} & \rho_{24}^{(N)} \\ \rho_{31}^{(N)} & \rho_{32}^{(N)} & \rho_{33}^{(N)} & \rho_{34}^{(N)} \\ \rho_{41}^{(N)} & \rho_{42}^{(N)} & \rho_{43}^{(N)} & \rho_{44}^{(N)} \end{pmatrix}, \quad (3.43)$$

cuja evolução temporal é governada pela equação de Liouville–von Neumann de ordem N:

$$\frac{d\rho^{(N)}}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_0, \rho^{(N)}] - \frac{i}{\hbar} [\hat{V}, \rho^{(N-1)}], \quad (3.44)$$

portanto, partindo do hamiltoniano definido na equação (3.13) e utilizando a SVEA, obtemos as equações de bloch de ordem N:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{11}^{(N)}}{dt} = & i(\Omega_{13}\sigma_{31}^{(N-1)} + \Omega_{14}\sigma_{41}^{(N-1)} - \bar{\Omega}_{13}\sigma_{13}^{(N-1)} - \bar{\Omega}_{14}\sigma_{14}^{(N-1)}) + \frac{\Gamma_3}{2}\rho_{33}^{(N)} + \frac{\Gamma_4}{2}\rho_{44}^{(N)} \\ & - \gamma_{\text{voo}}(\rho_{11}^{(N)} - \rho_{11}^{(0)}), \end{aligned} \quad (3.45)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{22}^{(N)}}{dt} = & i(\Omega_{23}\sigma_{32}^{(N-1)} + \Omega_{24}\sigma_{42}^{(N-1)} - \bar{\Omega}_{23}\sigma_{23}^{(N-1)} - \bar{\Omega}_{24}\sigma_{24}^{(N-1)}) + \frac{\Gamma_3}{2}\rho_{33}^{(N)} + \frac{\Gamma_4}{2}\rho_{44}^{(N)} \\ & - \gamma_{\text{voo}}(\rho_{22}^{(N)} - \rho_{22}^{(0)}), \end{aligned} \quad (3.46)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{33}^{(N)}}{dt} = & i(\bar{\Omega}_{13}\sigma_{13}^{(N-1)} + \bar{\Omega}_{23}\sigma_{23}^{(N-1)} - \Omega_{13}\sigma_{31}^{(N-1)} - \Omega_{23}\sigma_{32}^{(N-1)}) \\ & - (\Gamma_3 + \gamma_{\text{voo}})\rho_{33}^{(N)}, \end{aligned} \quad (3.47)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{44}^{(N)}}{dt} = & i(\bar{\Omega}_{14}\sigma_{14}^{(N-1)} + \bar{\Omega}_{24}\sigma_{24}^{(N-1)} - \Omega_{14}\sigma_{41}^{(N-1)} - \Omega_{24}\sigma_{42}^{(N-1)}) \\ & - (\Gamma_4 + \gamma_{\text{voo}})\rho_{44}^{(N)}, \end{aligned} \quad (3.48)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{12}^{(N)}}{dt} = & i(\Omega_{13}\sigma_{32}^{(N-1)} + \Omega_{14}e^{i\Delta kz}\sigma_{42}^{(N-1)} - \bar{\Omega}_{23}\sigma_{13}^{(N-1)} - \bar{\Omega}_{24}e^{i\Delta kz}\sigma_{14}^{(N-1)}) \\ & - (\gamma_{12} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta)\sigma_{12}^{(N)}, \end{aligned} \quad (3.49)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{34}^{(N)}}{dt} = & i(\bar{\Omega}_{13}e^{i\Delta kz}\sigma_{14}^{(N-1)} + \bar{\Omega}_{23}\sigma_{24}^{(N-1)} - \Omega_{14}e^{i\Delta kz}\sigma_{31}^{(N-1)} - \Omega_{24}\sigma_{32}^{(N-1)}) \\ & - (i\delta_a - i\delta_b + \gamma_{34} + \gamma_{\text{voo}})\sigma_{34}^{(N)}, \end{aligned} \quad (3.50)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{13}^{(N)}}{dt} = & i(\Omega_{13}(\rho_{33}^{(N-1)} - \rho_{11}^{(N-1)}) - \Omega_{23}\sigma_{12}^{(N-1)} + \Omega_{14}e^{i\Delta kz}\sigma_{43}^{(N-1)}) \\ & - (\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)\sigma_{13}^{(N)}, \end{aligned} \quad (3.51)$$

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{14}^{(N)}}{dt} = & i(\Omega_{14}(\rho_{44}^{(N-1)} - \rho_{11}^{(N-1)}) - \Omega_{24}e^{-i\Delta kz}\sigma_{12}^{(N-1)} + \Omega_{13}e^{-i\Delta kz}\sigma_{34}^{(N-1)}) \\ & - (\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)\sigma_{14}^{(N)}, \end{aligned} \quad (3.52)$$

$$\frac{d\sigma_{23}^{(N)}}{dt} = i(\Omega_{23}(\rho_{33}^{(N-1)} - \rho_{22}^{(N-1)}) - \Omega_{13}\sigma_{21}^{(N-1)} + \Omega_{24}\sigma_{43}^{(N-1)}) \quad (3.53)$$

$$\begin{aligned}
 & -(\gamma_{23} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_b)\sigma_{23}^{(N)}, \\
 \frac{d\sigma_{24}^{(N)}}{dt} = & i(\Omega_{24}(\rho_{44}^{(N-1)} - \rho_{22}^{(N-1)}) - \Omega_{14}e^{i\Delta kz}\sigma_{12}^{(N-1)} + \Omega_{23}\sigma_{34}^{(N-1)}) \\
 & -(\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)\sigma_{24}^{(N)}.
 \end{aligned} \tag{3.54}$$

Considerando que nosso sistema esta inicialmente com átomos no estado fundamental, temos as seguintes condições iniciais:

$$\rho_{11}(0) = \rho_{22}(0) = \frac{1}{2} \tag{3.55}$$

$$\rho_{33}(0) = \rho_{44}(0) = \sigma_{12}(0) = \sigma_{34}(0) = \sigma_{1i}(0) = \sigma_{2i}(0) = 0, \tag{3.56}$$

onde $\sigma_{1i}(0)(\sigma_{2i}(0))$ é a coerencia entre o estado fundamental $|1\rangle(|2\rangle)$ e o i -ésimo estado excitado. Com as equações de Bloch de ordem N já obtidas, podemos agora analisar as soluções para cada ordem de expansão.

3.3.1 Solução de ordem zero

Fazendo $N = 0$ no conjunto de equações (3.44 - 3.53) e considerando o regime estacionário, isto é, o regime em que as populações e coerencias não evoluem no tempo, obtemos as soluções de ordem zero para os elementos de matriz densidade:

$$0 = \frac{\Gamma_3}{2}\rho_{33}^{(0)} + \frac{\Gamma_4}{2}\rho_{44}^{(0)} - \gamma_{\text{voo}}(\rho_{11}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)}), \tag{3.57}$$

$$0 = \frac{\Gamma_3}{2}\rho_{33}^{(0)} + \frac{\Gamma_4}{2}\rho_{44}^{(0)} - \gamma_{\text{voo}}(\rho_{22}^{(0)} - \rho_{22}^{(0)}), \tag{3.58}$$

$$0 = (\Gamma_3 + \gamma_{\text{voo}})\rho_{33}^{(0)}, \tag{3.59}$$

$$0 = (\Gamma_4 + \gamma_{\text{voo}})\rho_{44}^{(0)}, \tag{3.60}$$

$$0 = (\gamma_{12} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta)\sigma_{12}^{(0)}, \tag{3.61}$$

$$0 = (i\delta_a - i\delta_b + \gamma_{34} + \gamma_{\text{voo}})\sigma_{34}^{(0)}, \tag{3.62}$$

$$0 = (\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)\sigma_{13}^{(0)}, \tag{3.63}$$

$$0 = (\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)\sigma_{14}^{(0)}, \tag{3.64}$$

$$0 = (\gamma_{23} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_b)\sigma_{23}^{(0)}, \tag{3.65}$$

$$0 = (\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)\sigma_{24}^{(0)}. \tag{3.66}$$

Portanto:

$$\rho_{11}^{(0)} = \rho_{22}^{(0)} = \frac{1}{2}, \quad (3.67)$$

$$\rho_{33}^{(0)} = \rho_{44}^{(0)} = \sigma_{12}^{(0)} = \sigma_{34}^{(0)} = \sigma_{13}^{(0)} = \sigma_{14}^{(0)} = \sigma_{23}^{(0)} = \sigma_{24}^{(0)} = 0, \quad (3.68)$$

como era de se esperar, na ausência de campo, as condições iniciais não se alteram.

3.3.2 Solução de primeira ordem

Para $N = 1$ as equações (3.44 - 3.53), no regime estacionário, se tornam:

$$0 = \frac{\Gamma_3}{2} \rho_{33}^{(1)} + \frac{\Gamma_4}{2} \rho_{44}^{(1)} - \gamma_{\text{voo}} \left(\rho_{11}^{(1)} - \frac{1}{2} \right), \quad (3.69)$$

$$0 = \frac{\Gamma_3}{2} \rho_{33}^{(1)} + \frac{\Gamma_4}{2} \rho_{44}^{(1)} - \gamma_{\text{voo}} \left(\rho_{22}^{(1)} - \frac{1}{2} \right), \quad (3.70)$$

$$0 = (\Gamma_3 + \gamma_{\text{voo}}) \rho_{33}^{(1)}, \quad (3.71)$$

$$0 = (\Gamma_4 + \gamma_{\text{voo}}) \rho_{44}^{(1)}, \quad (3.72)$$

$$0 = (\gamma_{12} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta) \sigma_{12}^{(1)}, \quad (3.73)$$

$$0 = (i\delta_a - i\delta_b + \gamma_{34} + \gamma_{\text{voo}}) \sigma_{34}^{(1)}, \quad (3.74)$$

$$0 = -\frac{i\Omega_{13}}{2} - (\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a) \sigma_{13}^{(1)}, \quad (3.75)$$

$$0 = -\frac{i\Omega_{14}}{2} - (\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a) \sigma_{14}^{(1)}, \quad (3.76)$$

$$0 = -\frac{i\Omega_{23}}{2} - (\gamma_{23} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_b) \sigma_{23}^{(1)}, \quad (3.77)$$

$$0 = -\frac{i\Omega_{24}}{2} - (\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a) \sigma_{24}^{(1)}, \quad (3.78)$$

logo:

$$\rho_{11}^{(1)} = \rho_{22}^{(1)} = \frac{1}{2}, \quad \rho_{33}^{(1)} = \rho_{44}^{(1)} = \sigma_{12}^{(1)} = \sigma_{34}^{(1)} = 0, \quad (3.79)$$

$$\sigma_{13}^{(1)} = -\frac{i\Omega_{13}}{2(\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)}, \quad \sigma_{14}^{(1)} = -\frac{i\Omega_{14}}{2(\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)}, \quad (3.80)$$

$$\sigma_{23}^{(1)} = -\frac{i\Omega_{23}}{2(\gamma_{23} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_b)}, \quad \sigma_{24}^{(1)} = -\frac{i\Omega_{24}}{2(\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)}. \quad (3.81)$$

3.3.3 Solução de segunda ordem

As soluções de segunda ordem são demasiadamente grandes, portanto, focaremos apenas nas dependências diretas da coerência de interesse, ou seja, na coerência que gera

o sinal de MQO. Portanto, no regime estacionário, temos:

$$0 = i\left(\frac{i|\Omega_{13}|^2}{2(\gamma_{31} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} + \frac{i|\Omega_{14}|^2}{2(\gamma_{41} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} + \frac{i|\Omega_{13}|^2}{2(\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} + \frac{i|\Omega_{14}|^2}{2(\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)}\right) + \frac{\Gamma_3}{2}\rho_{33}^{(2)} + \frac{\Gamma_4}{2}\rho_{44}^{(2)} - \gamma_{\text{voo}}(\rho_{11}^{(2)} - \frac{1}{2}), \quad (3.82)$$

$$0 = i\left(-\frac{i|\Omega_{13}|^2}{2(\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} - \frac{i|\Omega_{23}|^2}{2(\gamma_{23} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_b)} - \frac{i|\Omega_{13}|^2}{2(\gamma_{31} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} - \frac{i|\Omega_{23}|^2}{2(\gamma_{32} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_b)}\right) - (\Gamma_3 + \gamma_{\text{voo}})\rho_{33}^{(2)}, \quad (3.83)$$

$$0 = i\left(-\frac{i|\Omega_{14}|^2}{2(\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)} - \frac{i|\Omega_{24}|^2}{2(\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} - \frac{i|\Omega_{14}|^2}{2(\gamma_{41} + \gamma_{\text{voo}} - i\Delta - i\delta_a)} - \frac{i|\Omega_{24}|^2}{2(\gamma_{42} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)}\right) - (\Gamma_4 + \gamma_{\text{voo}})\rho_{44}^{(2)}, \quad (3.84)$$

$$0 = i\left(\frac{i\Omega_{13}\bar{\Omega}_{23}}{2(\gamma_{32} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_b)} + \frac{i\Omega_{14}\bar{\Omega}_{24}e^{i\Delta kz}}{2(\gamma_{42} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} + \frac{i\bar{\Omega}_{23}\Omega_{13}}{2(\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} + \frac{i\bar{\Omega}_{24}\Omega_{14}e^{i\Delta kz}}{2(\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)}\right) - (\gamma_{12} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta)\sigma_{12}^{(2)}, \quad (3.85)$$

$$0 = i\left(-\frac{i\bar{\Omega}_{13}\Omega_{14}e^{i\Delta kz}}{2(\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)} - \frac{i\bar{\Omega}_{23}\Omega_{24}}{2(\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} - \frac{i\Omega_{14}\bar{\Omega}_{13}e^{i\Delta kz}}{2(\gamma_{31} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} - \frac{i\Omega_{24}\bar{\Omega}_{23}}{2(\gamma_{32} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_b)}\right) - (i\delta_a - i\delta_b + \gamma_{34} + \gamma_{\text{voo}})\sigma_{34}^{(2)}, \quad (3.86)$$

o que nos leva a:

$$\rho_{11}^{(2)} = \frac{\left(-\frac{|\Omega_{13}|^2}{2(\gamma_{31} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} - \frac{|\Omega_{14}|^2}{2(\gamma_{41} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} - \frac{|\Omega_{13}|^2}{2(\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} - \frac{|\Omega_{14}|^2}{2(\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)}\right) + \frac{\Gamma_3}{2}\rho_{33}^{(2)} + \frac{\Gamma_4}{2}\rho_{44}^{(2)}}{\gamma_{\text{voo}}}, \quad (3.87)$$

$$\rho_{33}^{(2)} = \frac{\left(\frac{|\Omega_{13}|^2}{2(\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} + \frac{|\Omega_{23}|^2}{2(\gamma_{23} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_b)} + \frac{|\Omega_{13}|^2}{2(\gamma_{31} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} + \frac{|\Omega_{23}|^2}{2(\gamma_{32} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_b)}\right)}{\Gamma_3 + \gamma_{\text{voo}}}, \quad (3.88)$$

$$\rho_{44}^{(2)} = \frac{\left(\frac{|\Omega_{14}|^2}{2(\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)} + \frac{|\Omega_{24}|^2}{2(\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} + \frac{|\Omega_{14}|^2}{2(\gamma_{41} + \gamma_{\text{voo}} - i\Delta - i\delta_a)} + \frac{|\Omega_{24}|^2}{2(\gamma_{42} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)}\right)}{\Gamma_4 + \gamma_{\text{voo}}}, \quad (3.89)$$

$$\sigma_{12}^{(2)} = \frac{\left(-\frac{\Omega_{13} \bar{\Omega}_{23}}{2(\gamma_{23} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_b)} - \frac{\Omega_{14} \bar{\Omega}_{24} e^{i\Delta k z}}{2(\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} - \frac{\bar{\Omega}_{23} \Omega_{13}}{2(\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} - \frac{\bar{\Omega}_{24} \Omega_{14} e^{i\Delta k z}}{2(\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)} \right)}{\gamma_{12} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta}, \quad (3.90)$$

$$\sigma_{34}^{(2)} = \frac{\left(\frac{\bar{\Omega}_{13} \Omega_{14} e^{i\Delta k z}}{2(\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)} + \frac{\bar{\Omega}_{23} \Omega_{24}}{2(\gamma_{24} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_a)} + \frac{\Omega_{14} \bar{\Omega}_{13} e^{i\Delta k z}}{2(\gamma_{13} + \gamma_{\text{voo}} - i\delta_a)} + \frac{\Omega_{24} \bar{\Omega}_{23}}{2(\gamma_{23} + \gamma_{\text{voo}} + i\delta_b)} \right)}{i\delta_a - i\delta_b + \gamma_{34} + \gamma_{\text{voo}}}. \quad (3.91)$$

3.3.4 Solução de terceira ordem

Por fim, para $N = 3$, no regime estacionário, a equação (3.51) se torna:

$$0 = i(\Omega_{14}(\rho_{44}^{(2)} - \rho_{11}^{(2)}) - \Omega_{24}e^{-i\Delta k z}\sigma_{12}^{(2)} + \Omega_{13}e^{-i\Delta k z}\sigma_{34}^{(2)}) - (\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a)\sigma_{14}^{(3)}, \quad (3.92)$$

logo, a coerência que gera o sinal de MQO é dada por:

$$\sigma_{14}^{(3)} = \frac{i(\Omega_{14}(\rho_{44}^{(2)} - \rho_{11}^{(2)}) - \Omega_{24}e^{-i\Delta k z}\sigma_{12}^{(2)} + \Omega_{13}e^{-i\Delta k z}\sigma_{34}^{(2)})}{\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} + i\Delta + i\delta_a}. \quad (3.93)$$

Na Tabela 3.2, as taxas de decaimento associadas às populações dos estados excitados foram definidas segundo os valores tabulados em [21,22]. Já as taxas de decaimento das coerências γ_{ij} foram assumidas como sendo metade da soma das taxas de decaimento dos estados $|i\rangle$ e $|j\rangle$, isto é,

Taxas de Decaimento (MHz)	
Γ_3	$2\pi \times 6.06$
Γ_4	$2\pi \times 6.06$
γ_{12}	$\Gamma_3 \times 10^{-2}$
γ_{34}	$(\Gamma_3 + \Gamma_4)/2$
γ_{13}	$\Gamma_3/4$
γ_{24}	$\Gamma_4/4$
γ_{23}	$\Gamma_3/4$
γ_{14}	$\Gamma_4/4$

Tabela 3.2: Taxas de relaxação da linha D2 do átomo de rubídio [21,22]

$$\gamma_{ij} = \frac{\Gamma_i + \Gamma_j}{2}, \quad (3.94)$$

onde Γ_i e Γ_j são as taxas de decaimento populacionais desses níveis. Adicionalmente, a taxa de decaimento da coerência entre os estados fundamentais foi ajustada para melhor adequar os resultados teóricos aos dados experimentais. .

3.4 Integração em velocidade

Até este ponto, as equações foram derivadas considerando a interação com um átomo estacionário, sem levar em conta o movimento térmico. Em um vapor atômico, porém, cada átomo encontra os campos de excitação deslocados em frequência, de acordo com a projeção da sua velocidade na direção de propagação dos feixes. O efeito Doppler modifica os perfis de absorção e emissão, além de influenciar a coerência de terceira ordem que gera o sinal de Mistura de Quatro Ondas.

Para descrever com maior fidelidade o comportamento do vapor de rubídio, é necessário realizar uma média sobre a distribuição de velocidades dos átomos. Esse procedimento, denominado integração em velocidade, leva em conta que diferentes grupos de átomos interagem de maneira ligeiramente distinta com o feixe, de acordo com suas velocidades. A introdução desse efeito possibilita calcular perfis espectrais mais realistas, bem como avaliar o sinal de MQO em condições mais próximas das encontradas em laboratório.

Quando um átomo se desloca com velocidade v ao longo do eixo z , a frequência do campo no referencial do átomo difere da dessintonia δ definida no referencial do laboratório. Nesse caso, a dessintonia efetiva passa a ser:

$$\delta_v = \delta - k v, \quad (3.95)$$

onde k é o número de onda na direção z . A coerência de terceira ordem $\sigma_{14}^{(3)}$, que gera o sinal de MQO, torna-se dependente de δ_v .

A distribuição de velocidades dos átomos em equilíbrio térmico pode ser descrita, ao longo de z , por uma forma unidimensional da estatística de Maxwell-Boltzmann [30]:

$$W(v) = \frac{1}{u \sqrt{\pi}} e^{\left(-\frac{v^2}{u^2}\right)}. \quad (3.96)$$

Nessa expressão, v é a velocidade projetada no eixo z , e u é a velocidade mais provável no gás. Essa velocidade é definida por

$$u = \sqrt{\frac{2 k_B T}{m}}, \quad (3.97)$$

onde m é a massa do átomo, k_B é a constante de Boltzmann e T é a temperatura.

Cada átomo, ao se deslocar com velocidade v , percebe uma dessintonia δ_v e, portanto, apresenta uma coerência de terceira ordem $\sigma_{14_v}^{(3)}$. A coerência efetiva resultante de todo o vapor é obtida integrando essas contribuições, ponderadas pela distribuição de velocidades:

$$\sigma_{14}^{(3)} = \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_{14_v}^{(3)} W(v) dv, \quad (3.98)$$

em que $\sigma_{14}^{(3)}$ é a coerência de terceira ordem integrada sobre todas as velocidades dos átomos no vapor. O perfil do sinal resultante na equação (3.98) é conhecido na literatura como perfil Voigt.

3.5 Conexão com as equações de Maxwell

Como discutido anteriormente, a equação que captura a dinâmica de propagação do campo gerado é dada pela equação de onda de Maxwell em um meio não linear, que pode ser escrita como [31]:

$$\nabla^2 \mathbf{E}_s - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_s}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}(\omega_s)}{\partial t^2}, \quad (3.99)$$

onde $\mathbf{E}_s$ é o campo gerado e $\mathbf{P}(\omega_s)$ a polarização não linear que oscila com a frequência do campo. No formalismo de matriz densidade a polarização induzida no meio é definida como [26]:

$$\mathbf{P}(\omega) = N \langle \hat{\mu} \rangle = N \text{Tr}(\hat{\rho} \hat{\mu}), \quad (3.100)$$

dessa forma, a polarização que oscila com a frequência do campo é dada por:

$$\mathbf{P}(\omega_s) = N \mu_{14} \rho_{41}^{(3)} \equiv N \mu_{14} \sigma_{41}^{(3)} e^{i(k_s z - \omega_s t)}. \quad (3.101)$$

Substituindo (3.94) em (3.99) e escrevendo o campo de forma explícita, temos:

$$\nabla^2 \vec{\epsilon}_s(z, t) e^{i(k_s z - \omega_s t)} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{\epsilon}_s(z, t) e^{i(k_s z - \omega_s t)}}{\partial t^2} = \frac{N \mu_{14}}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \sigma_{41}^{(3)} e^{i(k_s z - \omega_s t)}}{\partial t^2}. \quad (3.102)$$

Para a parte espacial na equação de onda, temos:

$$\frac{\partial^2 \vec{\epsilon}_s(z, t) e^{i(k_s z - \omega_s t)}}{\partial z^2} = -k_s^2 \vec{\epsilon}_s(z, t) e^{i(k_s z - \omega_s t)} + 2i k_s e^{i(k_s z - \omega_s t)} \frac{\partial \vec{\epsilon}_s(z, t)}{\partial z} + e^{i(k_s z - \omega_s t)} \frac{\partial^2 \vec{\epsilon}_s(z, t)}{\partial z^2}. \quad (3.103)$$

Aqui utilizamos a aproximação paraxial, assumindo que a amplitude do campo varia lentamente com o tempo, de forma que:

$$\frac{\partial^2 \vec{\varepsilon}_s(z, t)}{\partial z^2} \ll \frac{\partial \vec{\varepsilon}_s(z, t)}{\partial z}. \quad (3.104)$$

Considerando agora a variação temporal na parte esquerda da equação (3.102), temos:

$$\frac{\partial^2 \vec{\varepsilon}_s(z, t) e^{i(k_s z - \omega_s t)}}{\partial t^2} = -\frac{\omega_s^2}{c^2} \vec{\varepsilon}_s(z, t) e^{i(k_s z - \omega_s t)} - 2i\omega_s e^{i(k_s z - \omega_s t)} \cancel{\frac{\partial \vec{\varepsilon}_s(z, t)}{\partial t}} + e^{i(k_s z - \omega_s t)} \cancel{\frac{\partial^2 \vec{\varepsilon}_s(z, t)}{\partial t^2}}. \quad (3.105)$$

Aqui utilizamos o fato de estarmos considerando o regime estacionário, isto é, o regime em que o campo não varia no tempo. Para o lado direito da equação (3.102), considerando o regime estacionário, ficamos com:

$$\frac{N\mu_{14}}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \sigma_{41}^{(3)} e^{i(k_s z - \omega_s t)}}{\partial t^2} = \frac{-N\mu_{14}\omega_s^2}{\epsilon_0 c^2} \sigma_{41}^{(3)} e^{i(k_s z - \omega_s t)}. \quad (3.106)$$

Rearranjando os termos na equação de onda, obtemos:

$$\frac{\partial \vec{\varepsilon}_s(z)}{\partial z} = \frac{iN\mu_{14}\omega_s}{2\epsilon_0 c} \sigma_{41}^{(3)}, \quad (3.107)$$

ou, utilizando a definição (3.12):

$$\frac{\partial \Omega_{41}}{\partial z} = \frac{iN\mu_{14}^2\omega_s}{2\hbar\epsilon_0 c} \sigma_{41}^{(3)}. \quad (3.108)$$

Logo:

$$\frac{\partial \Omega_{41}}{\partial z} = \frac{-i\kappa_{14}(\Omega_{41}(\rho_{44}^{(2)} - \rho_{11}^{(2)}) - \Omega_{42}e^{i\Delta k z}\sigma_{21}^{(2)} + \Omega_{31}e^{i\Delta k z}\sigma_{43}^{(2)})}{\gamma_{14} + \gamma_{\text{voo}} - i\Delta - i\delta_a}, \quad (3.109)$$

em que $\kappa_{14} = \frac{iN\mu_{14}^2\omega_s}{2\hbar\epsilon_0 c}$ é o coeficiente de propagação do sistema. A equação (3.109) pode ser vista como o resultado principal, onde o termo associado à diferença de população contribui para a absorção do sinal, representando a dissipação de energia devido à interação do campo com o meio não linear. Já os termos associados à exponencial de fase refletem o ganho do sinal, resultante da interação não linear entre os átomos e o campo, que promove uma amplificação do sinal na região de interação. Ainda, uma vez que o ângulo de cruzamento entre os feixes é muito pequeno, consideramos o regime de casamento de fase ($\Delta k = 0$), isto é, o regime em que a eficiência da interação não linear é máxima.

Devido à complexidade da solução analítica, a equação (3.109) foi resolvida de forma numérica, tomando como condição inicial $\Omega_{41}(z \leq 0 \text{ cm}) = 0$, significando que não há contribuição não linear antes de $z = 0$. Para resolver numericamente, utilizamos a linguagem `Julia` e o método Runge-Kutta de quinta ordem (RK5) da biblioteca

`Differentialequations.j` [32], garantindo tanto eficiência quanto precisão na obtenção dos resultados.

Além disso, os campos de excitação utilizados possuem polarizações lineares, o que implica a presença de componentes de polarização circular a direita e a esquerda. Essas componentes interagem de maneira diferenciada com os subníveis Zeeman, dependendo do eixo de quantização escolhido e da orientação dos campos. Essa interação define não apenas as transições permitidas, mas também a interferência quântica entre as diversas rotas, influenciando diretamente o perfil espectral e a intensidade do sinal observado. Portanto, a coerência responsável pela geração do sinal de MQO, considerando ambas as componentes de polarização, pode ser definida como:

$$\Omega_s^{(3)} = \Omega_{14\zeta}^{(3)} + \Omega_{23\zeta}^{(3)}, \quad (3.110)$$

em que $\Omega_{14\zeta}^{(3)}$ e $\Omega_{23\zeta}^{(3)}$ é a componente do campo de MQO com polarização circular a esquerda e a direita respectivamente.

Por fim, a modelagem precisa do sinal observado experimentalmente requer a consideração de todos os sistemas de quatro níveis que contribuem para o processo de Mistura de Quatro Ondas.

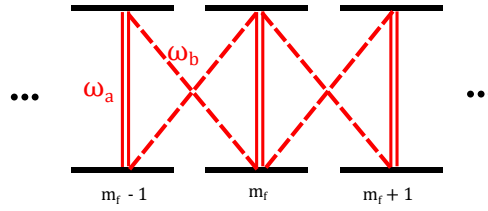


Figura 3.4: Subníveis Zeeman

Esses sistemas, formados pelos subníveis Zeeman na transição atômica analisada, desempenham papéis distintos, porém complementares, na formação das características do sinal, como a posição do pico, a intensidade relativa e a largura de linha. Para isso, consideramos a som sobre todos os sistemas que contribuem para o sinal gerado. Somente ao considerar todas essas contribuições de forma coerente, levando em conta as diferentes rotas de excitação e as polarizações envolvidas, é possível obter um modelo teórico que reproduza de maneira qualitativa as características experimentais observadas.

3.6 Comparação teórico-experimental

As Figuras 3.5 (a), (b) e (c) apresentam, respectivamente, o espectro de absorção saturada, o sinal experimental de MQO para as duas ressonâncias dos isótopos ^{85}Rb e ^{87}Rb , e o correspondente sinal teórico. Para os dados teóricos mostrados na Figura 3.5 (c), consideramos uma densidade atômica de $N = 2 \times 10^{12}$ átomos/cm³, com as intensidades dos feixes mantidas constantes em $I_b = 50$ mW/cm² e $I_a = 450$ mW/cm².

Para realizar uma comparação quantitativa entre teoria e experimento, assumimos que a intensidade I_s do sinal gerado é proporcional ao quadrado da amplitude do campo gerado, ou seja:

$$I_s \propto |\Omega_s|^2,$$

conforme discutido em [2].

A análise comparativa entre os resultados experimentais e teóricos indica uma boa concordância qualitativa nos perfis espectrais, embora pequenas diferenças quantitativas ainda possam ser observadas. Por exemplo, na ressonância ^{85}Rb , a largura experimental

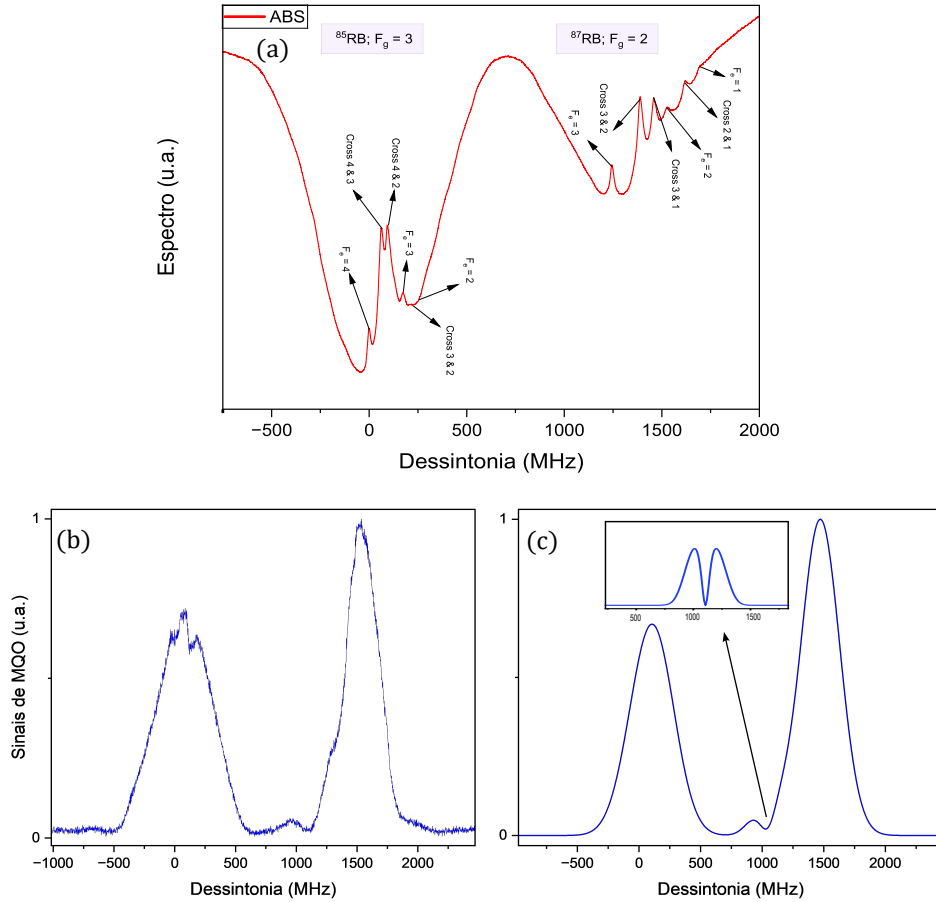


Figura 3.5: (a) Espectro de absorção saturada; (b) sinal experimental de MQO para as ressonâncias do ^{85}Rb e ^{87}Rb ; (c) sinal teórico correspondente. A janela na figura (c) corresponde ao sinal de MQO na ressonância ciclica do ^{87}Rb

(525,6 MHz) excede a previsão teórica (469 MHz) em aproximadamente 11%, enquanto a posição do pico experimental (78,5 MHz) apresenta um desvio de 12% em relação ao valor teórico (70 MHz). No caso do ^{87}Rb , observa-se um comportamento distinto: a largura teórica (365,9 MHz) supera a experimental (317,7 MHz) em cerca de 15%, enquanto a posição do pico teórico (1570,2 MHz) concorda com o experimento (1540,3 MHz) dentro de 2%. De um modo geral, obtivemos um excelente acordo entre teoria e experimento para o sinal analisado.

O modelo teórico revela que a diferença na FWHM entre os sinais dos dois isótopos está principalmente associada ao espaçamento entre os níveis hiperfinos de cada isótopo e às diferenças em seus momentos dipolares de transição. No caso do ^{87}Rb , uma pequena elevação é observada próximo à cauda do sinal, resultante da contribuição residual do sinal de mistura de quatro ondas associado a transição ciclica ($F_g = 2 \rightarrow F_e = 3$) do ^{87}Rb , a parte direita desse sinal contribui para o sinal composto formado pelas ressonâncias $F_e = 2$ e $F_e = 1$, já a parte esquerda surge como uma pequena elevação sutil no espectro proximo a cauda do sinal na região de baixa frequência. Essa observação é consistente tanto com o modelo teórico quanto com os dados experimentais.

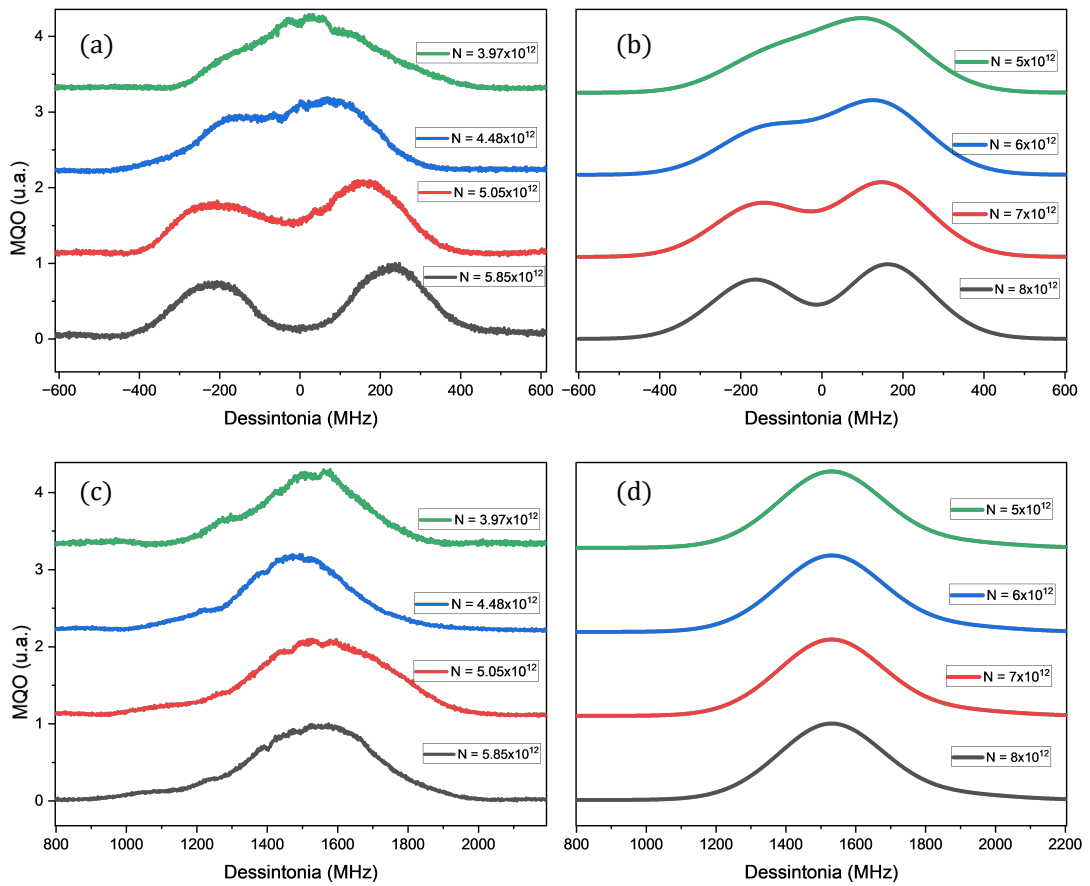


Figura 3.6: Espectros de Mistura de Quatro Ondas (MQO) para os isótopos ^{85}Rb (a-b) e ^{87}Rb (c-d). Subfiguras (a) e (c): dados experimentais. Subfiguras (b) e (d): modelos teóricos. Intensidades fixas dos feixes de bombeio: $I_b = 50 \text{ mW/cm}^2$, $I_a = 444 \text{ mW/cm}^2$.

A figura 3.6 nos mostra os espectros de MQO para diferentes valores de densidade quando fixamos as intensidades em $I_b = 50 \text{ mW/cm}^2$, $I_a = 444 \text{ mW/cm}^2$. No caso do ^{85}Rb , tanto os dados experimentais quanto o modelo teórico exibem um vale central cuja profundidade aumenta com a densidade atômica. Esse comportamento é atribuído à absorção do sinal de MQO durante sua propagação pela célula. Como o sinal é gerado na região central da célula, sua difusão para as extremidades sofre atenuação progressiva devido à absorção pelo próprio vapor de rubídio. Em densidades mais altas, o aumento

da opacidade óptica intensifica esse efeito, aprofundando o vale na região espectral correspondente à transição cíclica.

O modelo teórico reproduz qualitativamente esse mecanismo, no entanto, há uma diferença crucial: enquanto o modelo teórico consegue descrever o comportamento central do sinal de maneira qualitativa, ele não consegue reproduzir o comportamento nas bordas do espectro. Em outras palavras, o modelo teórico mostra que o vale central se aprofunda à medida que a densidade aumenta, mas não há propagação desse efeito para as bordas do espectro, o que é observado experimentalmente.

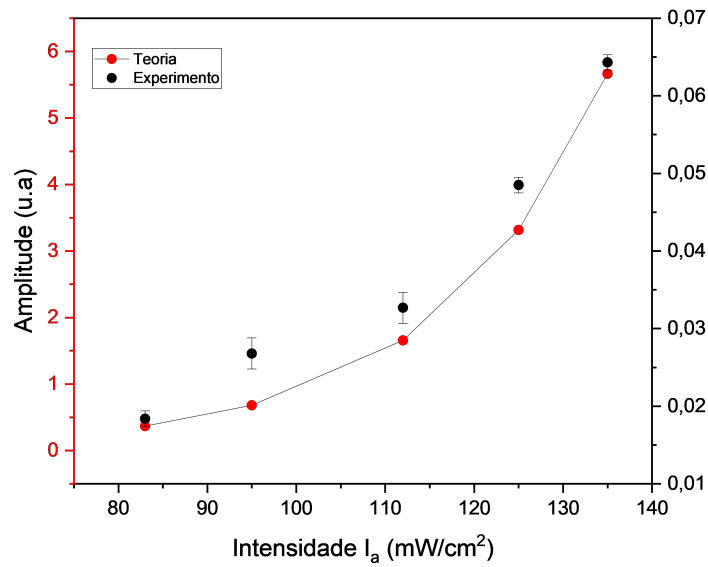


Figura 3.7: Amplitude do sinal de MQO em função da intensidade do campo A . Os pontos vermelhos correspondem ao modelo teórico e os pretos aos dados experimentais.

A figura 3.7 nos mostra como a amplitude do sinal varia em função da intensidade do campo A . Os pontos pretos correspondem ao modelo teórico, enquanto os pontos vermelhos representam os dados experimentais. De acordo com a previsão teórica, os picos de amplitude seguem um comportamento polinomial de segundo grau à medida que se varia a intensidade do campo B . Observa-se que os dados experimentais acompanham esse comportamento de forma qualitativa, ainda que com pequenas discrepâncias atribuíveis a limitações experimentais e às simplificações adotadas no modelo.

Já a figura 3.8, que mostra a dependência da amplitude do sinal com a intensidade do campo B , revela um cenário diferente. O modelo teórico prevê um crescimento linear da amplitude com B , enquanto os dados experimentais apresentam um comportamento linear apenas em baixas intensidades. A medida que nos aproximamos de 3 mW/cm², a amplitude experimental começa a decair, indicando a presença de um processo de competição na região de interação dentro da célula de rubídio.

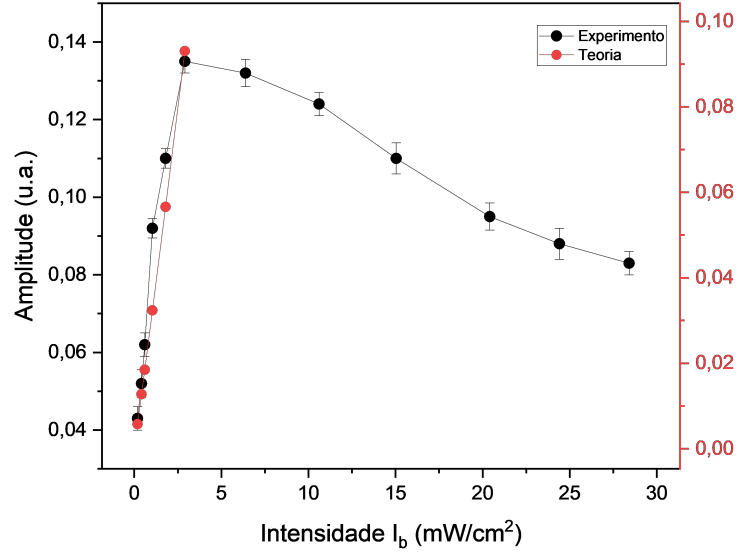


Figura 3.8: Amplitude do sinal de MQO em função da intensidade do campo B . Comparação entre modelo teórico (pontos pretos) e dados experimentais (pontos vermelhos).

Esse efeito pode ser interpretado como uma redistribuição populacional: à medida que a intensidade do campo B aumenta, a população disponível para interagir com o campo A é reduzida, diminuindo assim a eficiência do processo de geração do sinal na direção $2k_a - k_b$, e favorecendo, por consequência, a direção oposta $2k_b - k_a$.

Capítulo 4

Considerações finais

Neste trabalho, realizamos uma investigação detalhada do processo de mistura de quatro ondas (MQO) na linha D2 do átomo de rubídio. Através de uma abordagem integrada entre teoria e experimento, estudamos os fatores que influenciam a geração do sinal não linear, destacando especialmente os efeitos das intensidades dos feixes incidentes e da densidade atômica do vapor.

O estudo experimental permitiu caracterizar claramente os perfis espectrais dos sinais de MQO para os isótopos ^{85}Rb e ^{87}Rb , revelando a sensibilidade desses sinais às condições experimentais, tais como intensidades dos feixes de excitação e densidade atômica. Identificamos que o aumento da densidade atômica intensifica efeitos como a reabsorção ressonante, manifestada claramente no vale central do sinal de MQO do isótopo ^{85}Rb . Além disso, observamos experimentalmente que o comportamento da amplitude do sinal em função das intensidades dos feixes de excitação indica uma competição significativa entre esses campos, influenciando diretamente a eficiência da interação não linear.

Do ponto de vista teórico, desenvolvemos um modelo baseado no formalismo da matriz densidade, expandindo a solução das equações ópticas de Bloch até a terceira ordem para descrever adequadamente o fenômeno estudado. O modelo teórico implementado considerou de maneira rigorosa a integração em velocidades para reproduzir os efeitos Doppler, proporcionando resultados mais próximos da realidade experimental. Além disso, a solução numérica das equações de propagação, em conjunto com as equações de Maxwell, permitiu explorar com maior profundidade a evolução espacial do campo gerado na célula.

A comparação entre as previsões teóricas e os resultados experimentais mostrou boa concordância qualitativa, embora certas discrepâncias quantitativas tenham sido identificadas. Estas diferenças sugerem que efeitos adicionais, não completamente considerados no modelo atual — tais como índice de refração não linear, propagação dos campos de excitação e perdas no meio — podem estar influenciando os resultados experimentais de maneira significativa.

Atualmente, está em desenvolvimento um novo arranjo experimental com capacidade de detectar simultaneamente os dois sinais de MQO gerados nas direções $2\vec{k}_a - \vec{k}_b$ e $2\vec{k}_b - \vec{k}_a$. Essa nova configuração representa uma evolução significativa em relação ao sistema anterior, que permitia a detecção de apenas um dos sinais por vez. Com ela, será possível estudar de maneira mais direta a competição entre os feixes de excitação, além de investigar a relação de dependência entre os sinais gerados. Também se abre a possibilidade de explorar sistematicamente como esses sinais variam com o ângulo de cruzamento entre os feixes e com diferentes configurações de polarização — parâmetros que podem influenciar fortemente o equilíbrio entre as rotas de geração dos sinais.

Referências Bibliográficas

- [1] MOORE, G. E. Cramming more components onto integrated circuits. *Electronics*, v. 38, n. 8, p. 114–117, 1965. Disponível em: <https://www.computerhistory.org/collections/catalog/102770822>. Acessado em 1 de abril de 2025.
- [2] BOYD, R. W. *Nonlinear Optics*. 3rd. ed. Amsterdam: Academic Press, 2008. ISBN 978-0-12-369470-6.
- [3] MAYER, M. G. *Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen*. Tese (Tese (Doutorado em Física)) — University of Göttingen, 1930. 106 f.
- [4] MAIMAN, T. H. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, v. 187, n. 4736, p. 493–494, 1960. Disponível em: <https://doi.org/10.1038/187493a0>. Acesso em 03 ag. 2024.
- [5] AGRAWAL, G. P. *Nonlinear Fiber Optics*. [S.l.]: Academic Press, 2013.
- [6] SHEN, Y. R. *The Principles of Nonlinear Optics*. [S.l.]: Wiley-Interscience, 2003.
- [7] AGRAWAL, G. P. *Fiber-Optic Communication Systems*. [S.l.]: Wiley, 2010.
- [8] WEINER, A. M. *Ultrafast Optics*. [S.l.]: Wiley, 2009.
- [9] MILONNI, P. W.; EBERLY, J. H. *Laser Physics*. [S.l.]: Wiley, 2010.
- [10] WEBB, R. H. Confocal optical microscopy. *Reports on Progress in Physics*, v. 59, n. 3, p. 427, 1996.
- [11] KWIAT, P. G. et al. New high-intensity source of polarization-entangled photon pairs. *Physical Review Letters*, v. 75, n. 24, p. 4337–4341, 1995.
- [12] BARROS, H. G. et al. Coherent control of quantum interference in two-photon absorption. *Physical Review A*, v. 74, n. 5, p. 055402, 2006. Disponível em: <https://www.researchgate.net/publication/236483098>. Acessado em 16 de junho de 2025.
- [13] FERRAZ, J. et al. Quantum interference in atomic vapor observed by four-wave mixing with incoherent light. *Optics Letters*, v. 30, n. 14, p. 1876–1878, 2005. Disponível em: <https://www.researchgate.net/publication/7668790>. Acessado em 16 de junho de 2025.

-
- [14] MELO, N. R. *Mistura de quatro ondas em átomos de rubídio envolvendo estados de Rydberg*. Tese (Tese (Doutorado em Física)) — Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2014. 113 f. Disponível em: <https://repositorio.ufpe.br/handle/123456789/12732>. Acesso em: 08 mar. 2024.
- [15] BAEK, J. et al. Polarization-selective four-wave mixing in a degenerate multi-level system. *Scientific Reports*, v. 14, p. 5705, 2024. Disponível em: <<https://doi.org/10.1038/s41598-024-56229-5>>.
- [16] ALVAREZ, A. S.; ALMEIDA, A. A. C. de; VIANNA, S. S. Two symmetric four-wave mixing signals generated in a medium with anomalous refractive index. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, v. 54, n. 4, p. 045403, 2021.
- [17] ALVAREZ, A. S. *Estudo das flutuações de intensidade e do efeito do índice de refração em dois sinais simétricos de mistura de quatro ondas gerados em vapor de rubídio*. Tese (Doutorado) — Universidade Federal de Pernambuco, Recife, Brasil, 2024. 80 f. Disponível em: <https://repositorio.ufpe.br/handle/123456789/56686>. Acesso 27 Ag. 2024.
- [18] ALMEIDA, A. A. C. d. *Forward four-wave mixing experiments in hot and cold atomic systems*. Tese (Doutorado) — Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2023. 166 f. Disponível em: <https://repositorio.ufpe.br/handle/123456789/49535>; Acesso em: 01 jan. 2024.
- [19] ALMEIDA, A. A. C. de. *Spectral analysis of the four-wave mixing in a cold atomic sample using a single CW laser*. Dissertação (Mestrado) — Universidade Federal de Pernambuco, 2019. 66 f. Disponível em: <https://repositorio.ufpe.br/handle/123456789/33525>. Acesso em: 01 set. 2024.
- [20] GALLAGHER, A.; LEWIS, E. L. Determination of the vapor pressure of rubidium by optical absorption. *Journal of the Optical Society of America*, v. 63, p. 864–869, 1973.
- [21] STECK, D. A. *Rubidium 87 D Line Data*. 2003. Disponível em: <https://steck.us/alkalidata/rubidium87numbers.1.6.pdf>. Acesso em: 14 jan. 2025.
- [22] STECK, D. A. *Rubidium 85 D Line Data*. 2003. Disponível em: <https://steck.us/alkalidata/rubidium85numbers.pdf>. Acesso em: 14 jan. 2025.
- [23] SCHAWLOW, A. L. Spectroscopy in a new light. *Nobel Lecture*, 1981. Disponível em: <https://www.nobelprize.org/uploads/2018/06/schawlow-lecture.pdf>. Acessado em: 16 jun. 2025.

- [24] COLUCCI, C. Hyperfine structure of rubidium 85 and 87 isotopes: High resolution laser spectroscopy. *Preprint*, 2024. Disponível em: <https://www.researchgate.net/publication/380068632>. Acessado em 16 de junho de 2025.
- [25] SCULLY, M. O.; ZUBAIRY, M. S. *Quantum Optics*. Cambridge: Cambridge University Press, 1997.
- [26] ZWIEBACH, B. *Mastering Quantum Mechanics: Essentials, Theory, and Applications*. Cambridge, Massachusetts: MIT Press, 2022. Disponível em: <https://mitpress.mit.edu/9780262046138/mastering-quantum-mechanics/>. Acessado em 16 de junho de 2025.
- [27] CALOI, R. M.; NERI, D. The slowly varying envelope approximation revised. *INFN*, 1992. Disponível em: https://www.researchgate.net/publication/330006251_The_Slowly_Varying_Envelope_Approximation_Revised. Acesso em: 08 ag. 2024.
- [28] ARAUJO, M. O. et al. Measurement of the kerr nonlinear refractive index of cs vapor. *Physical Review A*, v. 88, n. 6, p. 063818, 2013.
- [29] ARAUJO, M. O. d. *Investigação experimental e modelo teórico para o índice de refração não-linear da linha D2 do cézio*. Dissertação (Dissertação (Mestrado em Física)) — Universidade Federal da Paraíba, João Pessoa, 2013. Disponível em: <https://repositorio.ufpb.br/jspui/handle/tede/5739>. Acesso 08 ag. 2024.
- [30] SALINAS, S. R. A. *Introdução à Mecânica Estatística*. 2. ed. São Paulo: Edusp, 2002.
- [31] JACKSON, J. D. *Eletrodinâmica Clássica*. 3. ed. Rio de Janeiro: LTC, 2009. Tradução da obra original: Classical Electrodynamics, 3rd ed.
- [32] RACKAUCKAS, C.; NIE, Q. Differentialequations.jl – a performant and feature-rich ecosystem for solving differential equations in julia. *Journal of Open Research Software*, v. 5, n. 1, 2017. Disponível em: <https://doi.org/10.5334/jors.151>. Acesso 08 nov. 2024.

APÊNDICES

Capítulo A

Código-fonte

A seguir apresentamos o código utilizado para solução numérica da equação 3.108.

```
1 using OrdinaryDiffEq
2 using Plots
3 using QuadGK
4 using LinearAlgebra: norm
5 using Base.Threads
6
7 # -----
8 # CONSTANTES
9 # -----
10  $\Gamma_3 = 2\pi * 6/2$ 
11  $\Gamma_4 = 2\pi * 6/2$ 
12
13 c = 2.997e8
14  $\epsilon_0 = 8e-12$ 
15  $\hbar = 1.054e-34$ 
16 N = 1.6e12
17
18  $\gamma_{21} = 1e-2 * \Gamma_3$ 
19  $\gamma_{23} = 0.25 * \Gamma_3$ 
20  $\gamma_{31} = 0.25 * \Gamma_3$ 
21  $\gamma_{24} = 0.25 * \Gamma_4$ 
22  $\gamma_{14} = 0.25 * \Gamma_4$ 
23  $\gamma_{34} = 0.5 * (\Gamma_3 + \Gamma_4)$ 
24  $\gamma_{12} = \gamma_{21}$ 
25  $\gamma_{13} = \gamma_{31}$ 
26  $\gamma_{14} = \gamma_{41}$ 
27  $\gamma_{43} = \gamma_{34}$ 
28  $\gamma_{42} = \gamma_{24}$ 
```

```

29  $\gamma_{32} = \gamma_{23}$ 
30  $\gamma_{\text{voo}} = 1$ 
31  $\theta = 0.002$  # 2 mrad
32
33  $r = 144$ 
34  $j = 40$ 
35  $\Omega_{23} = j * \Gamma_3$ 
36  $\Omega_{13} = r * \Gamma_3$ 
37  $\Omega_{24} = r * \Gamma_3$ 
38  $\Omega_{14} = j * \Gamma_3$ 
39
40 # Condições iniciais
41  $\Omega_{L\_initial} = 0.0 + 0.0im$ 
42  $\Omega_{R\_initial} = 0.0 + 0.0im$ 
43
44
45 # -----
46 # SEIS CONJUNTOS DE MU (CADA UM COM 3)
47 # E SUAS FREQUÊNCIAS DE TRANSIÇÃO
48 # -----
49 w_prime_values = [
50     384227630.74,
51     384227364.089,
52     384227207.148
53 ]
54
55 mu_values_set1 = [
56     3.58425*sqrt(0)*1e-29,
57     -3.58425*sqrt(0)*1e-29,
58     3.58425*sqrt(1/2)*1e-29*0
59 ]
60
61 mu_values_set2 = [
62     3.58425*sqrt(0)*1e-29,
63     3.58425*sqrt(1/12)*1e-29,
64     3.58425*sqrt(1/3)*1e-29
65 ]
66
67 mu_values_set3 = [
68     3.58425*sqrt(1/120)*1e-29,
69     -3.58425*sqrt(1/8)*1e-29,

```

```

70     3.58425*sqrt(1/5)*1e-29
71 ]
72
73 mu_values_set4 = [
74     3.58425*sqrt(1/40)*1e-29,
75     -3.58425*sqrt(1/8)*1e-29,
76     3.58425*sqrt(1/10)*1e-29
77 ]
78
79 mu_values_set5 = [
80     3.58425*sqrt(1/20)*1e-29*0,
81     -3.58425*sqrt(1/12)*1e-29,
82     -3.58425*sqrt(1/30)*1e-29
83 ]
84
85 mu_values_set6 = [
86     3.58425*sqrt(3/8)*1e-29*0,
87     -3.58425*sqrt(5/72)*1e-29*0,
88     0
89 ]
90
91 # Espelhando sets para polarizao R, se necessario
92 mu_values_set1_R = mu_values_set6
93 mu_values_set2_R = mu_values_set5
94 mu_values_set3_R = mu_values_set4
95 mu_values_set4_R = mu_values_set3
96 mu_values_set5_R = mu_values_set2
97 mu_values_set6_R = mu_values_set1
98
99 mu_sets_L = [
100     mu_values_set1,
101     mu_values_set2,
102     mu_values_set3,
103     mu_values_set4,
104     mu_values_set5,
105     mu_values_set6
106 ]
107 mu_sets_R = [
108     mu_values_set1_R,
109     mu_values_set2_R,
110     mu_values_set3_R,

```

```

111     mu_values_set4_R,
112     mu_values_set5_R,
113     mu_values_set6_R
114 ]
115
116 # -----
117 # FUNO DE DISTRIBUIO DE VELOCIDADES
118 # -----
119 function maxwell_boltzmann(v)
120     # Retorna a densidade de probabilidade de velocidade v
121     T = 273.15 + 80 # Temperatura em K
122     m_rb = 1.44316060e-25 # Massa do tomo (aprox)
123     k_B = 1.38e-23
124     u = sqrt(2 * k_B * T / m_rb)
125     factor = 1 / (u * sqrt(pi))
126     return factor * exp(-v^2 / u^2)
127 end
128
129 # -----
130 # COERNCIA  $\sigma$  PARA POLARIZAO ESQUERDA
131 # -----
132 function coherence14_left( $\Omega_L$ , w, w_prime, z,  $\mu$ , v)
133     # Esta funo calcula  $\sigma$  em funo da velocidade v,
134     # integrando depois no final (via quadgk).
135      $\delta$  = (w - w_prime - (w_prime/c)*v + 384228836.205)
136     delta_k( $\delta$ ) = (w + w_prime)/c * (cos( $\theta$ ) - cos(3 $\theta$ ))
137
138     function sigma34( $\delta$ , z)
139          $\delta k$  = delta_k( $\delta$ )
140         t1 =  $\Omega_L$  * conj( $\Omega_{13}$ ) * exp(1im* $\delta k$ *z) / (2*(1im* $\delta$  +  $\gamma_{14}$  +  $\gamma_{voo}$ ))
141         t2 =  $\Omega_{24}$  * conj( $\Omega_{23}$ ) / (2*(1im* $\delta$  +  $\gamma_{24}$  +  $\gamma_{voo}$ ))
142         t3 = conj( $\Omega_{13}$ ) *  $\Omega_L$  * exp(1im* $\delta k$ *z) / (2*(-1im* $\delta$  +  $\gamma_{13}$  +  $\gamma_{voo}$ ))
143         t4 = conj( $\Omega_{23}$ ) *  $\Omega_{24}$  / (2*(1im* $\delta$  +  $\gamma_{23}$  +  $\gamma_{voo}$ ))
144         return 0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) / ( $\gamma_{34}$  +  $\gamma_{voo}$ )
145     end
146
147     function sigma12( $\delta$ , z)
148          $\delta k$  = delta_k( $\delta$ )
149         t1 = conj( $\Omega_{23}$ ) *  $\Omega_{13}$  * exp(1im* $\delta k$ *z) / (2*(1im* $\delta$  +  $\gamma_{23}$  +  $\gamma_{voo}$ ))
150         t2 = conj( $\Omega_{24}$ ) *  $\Omega_L$  / (2*(-1im* $\delta$  +  $\gamma_{24}$  +  $\gamma_{voo}$ ))
151         t3 =  $\Omega_{13}$  * conj( $\Omega_{23}$ ) * exp(1im* $\delta k$ *z) / (2*(1im* $\delta$  +  $\gamma_{13}$  +  $\gamma_{voo}$ ))

```

```

152     t4 = Ω_L * conj(Ω_24) / (2*(1im*δ + γ_23 + γ_voo))
153     return -0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) / γ_13
154 end
155
156 function population_44(δ)
157     t1 = abs(Ω_L)^2 / (2*(1im*δ + γ_14 + γ_voo))
158     t2 = abs(Ω_24)^2 / (2*(1im*δ + γ_24 + γ_voo))
159     t3 = abs(Ω_L)^2 / (2*(-1im*δ + γ_41 + γ_voo))
160     t4 = abs(Ω_24)^2 / (2*(-1im*δ + γ_42 + γ_voo))
161     return 0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) / (Γ_4 + γ_voo)
162 end
163
164 function population_33(δ)
165     t1 = abs(Ω_13)^2 / (2*(1im*δ + γ_13 + γ_voo))
166     t2 = abs(Ω_23)^2 / (2*(-1im*δ + γ_23 + γ_voo))
167     t3 = abs(Ω_13)^2 / (2*(-1im*δ + γ_31 + γ_voo))
168     t4 = abs(Ω_23)^2 / (2*(1im*δ + γ_32 + γ_voo))
169     return 0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) / (Γ_3 + γ_voo)
170 end
171
172 function population_11(δ)
173     t1 = abs(Ω_L)^2 / (2*(1im*δ + γ_14 + γ_voo))
174     t2 = abs(Ω_24)^2 / (2*(1im*δ + γ_24 + γ_voo))
175     t3 = abs(Ω_L)^2 / (2*(-1im*δ + γ_41 + γ_voo))
176     t4 = abs(Ω_24)^2 / (2*(-1im*δ + γ_42 + γ_voo))
177     return (-0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) +
178           population_33(δ)*Γ_3/2 + population_44(δ)*Γ_4/2 + 0.5)/γ_voo
179 end
180
181 return (1im * (
182     conj(Ω_13)*sigma34(δ, z)*exp(-1im*delta_k(δ)*z) +
183     (population_44(δ) - population_11(δ)) * Ω_L -
184     Ω_24*sigma12(δ, z)*exp(-1im*delta_k(δ)*z)
185 ) / (1im*δ + γ_14 + γ_voo))
186 end
187
188 # -----
189 # COERNCIA σ PARA POLARIZAO DIREITA
190 # -----
191 function coherence23_right(Ω_R, w, w_prime, z, μ, v)
192     # Equivalente ao anterior, mas para a coerencia da polarizacao direita

```

```

193     δ= (w - w_prime - (w_prime/c)*v + 384228836.205)
194     delta_k(δ) = (w + w_prime)/c * (cos(θ) - cos(3θ))
195
196     function sigma43(δ, z)
197         δk = delta_k(δ)
198         t1 = conj(Ω_14) * Ω_13 * exp(-1im*δk*z) / (2*(-1im*δ + γ_14 + γ_voo))
199         t2 = conj(Ω_24) * Ω_R / (2*(-1im*δ + γ_24 + γ_voo))
200         t3 = Ω_13 * conj(Ω_14) * exp(-1im*δk*z) / (2*(1im*δ + γ_13 + γ_voo))
201         t4 = Ω_R * conj(Ω_24) / (2*(-1im*δ + γ_23 + γ_voo))
202         return 0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) / (γ_34 + γ_voo)
203     end
204
205     function sigma21(δ, z)
206         δk = delta_k(δ)
207         t1 = Ω_R * conj(Ω_13) * exp(-1im*δk*z) / (2*(-1im*δ + γ_23 + γ_voo))
208         t2 = Ω_24 * conj(Ω_14) / (2*(1im*δ + γ_24 + γ_voo))
209         t3 = conj(Ω_13) * Ω_R * exp(-1im*δk*z) / (2*(-1im*δ + γ_13 + γ_voo))
210         t4 = conj(Ω_14) * Ω_24 / (2*(-1im*δ + γ_23 + γ_voo))
211         return -0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) / γ_13
212     end
213
214     function population_44(δ)
215         t1 = abs(Ω_14)^2 / (2*(1im*δ + γ_14 + γ_voo))
216         t2 = abs(Ω_24)^2 / (2*(1im*δ + γ_24 + γ_voo))
217         t3 = abs(Ω_14)^2 / (2*(-1im*δ + γ_41 + γ_voo))
218         t4 = abs(Ω_24)^2 / (2*(-1im*δ + γ_42 + γ_voo))
219         return 0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) / (Γ_4 + γ_voo)
220     end
221
222     function population_33(δ)
223         t1 = abs(Ω_13)^2 / (2*(1im*δ + γ_13 + γ_voo))
224         t2 = abs(Ω_R)^2 / (2*(-1im*δ + γ_23 + γ_voo))
225         t3 = abs(Ω_13)^2 / (2*(-1im*δ + γ_31 + γ_voo))
226         t4 = abs(Ω_R)^2 / (2*(1im*δ + γ_32 + γ_voo))
227         return 0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) / (Γ_3 + γ_voo)
228     end
229
230     function population_22(δ)
231         t1 = abs(Ω_14)^2 / (2*(1im*δ + γ_14 + γ_voo))
232         t2 = abs(Ω_24)^2 / (2*(1im*δ + γ_24 + γ_voo))
233         t3 = abs(Ω_14)^2 / (2*(-1im*δ + γ_41 + γ_voo))

```

```

234     t4 = abs(Ω24)^2 / (2*(-lim*δ + γ42 + γvoo))
235     return (-0.5*(t1 + t2 + t3 + t4) +
236           population_33(δ)*Γ3/2 + population_44(δ)*Γ4/2 + 0.5)/γvoo
237 end
238
239 return (lim * (
240     conj(Ω13)*sigma43(δ, z) +
241     (population_33(δ) - population_22(δ)) * Ω14 -
242     Ω24*sigma21(δ, z)
243 ) / (lim*δ + γ23 + γvoo))
244 end
245
246 # -----
247 # INTEGRAR COERNCIA σ e σ SOBRE AS VELOCIDADES
248 # -----
249 function integrate_coherence_left(ΩL, w, w_prime, z, μ)
250     # Integra a coerencia para a polarizao esquerda em velocidades
251     integrand(v) = maxwell_boltzmann(v) * coherence14_left(ΩL, w, w_prime, z, μ
252         ↪ , v)
253     result, _ = quadgk(integrand, -700, 700)
254     return result
255 end
256
257 function integrate_coherence_right(ΩR, w, w_prime, z, μ)
258     # Integra a coerencia para a polarizao direita em velocidades
259     integrand(v) = maxwell_boltzmann(v) * coherence23_right(ΩR, w, w_prime, z,
260         ↪ μ, v)
261     result, _ = quadgk(integrand, -700, 700)
262     return result
263 end
264
265 # -----
266 # EDO PARA AS DUAS POLARIZAES
267 # -----
268 function ODE_left!(du, u, p, z)
269     # Define dΩL/dz para a polarizao esquerda
270     ΩL = u[1]
271     w = p[1]
272     w_prime = p[2]
273     μ = p[3]

```



```

273     R = (-lim * N *  $\mu^2$  * w_prime) / (2 *  $\hbar$ *  $\epsilon_0$  * c)
274     du[1] = R * integrate_coherence_left( $\Omega_L$ , w, w_prime, z,  $\mu$ )
275 end
276
277 function ODE_right!(du, u, p, z)
278     # Define d $\Omega_R$ /dz para a polarizao direita
279      $\Omega_R$  = u[1]
280     w = p[1]
281     w_prime = p[2]
282      $\mu$  = p[3]
283
284     R = (-lim * N *  $\mu^2$  * w_prime) / (2 *  $\hbar$ *  $\epsilon_0$  * c)
285     du[1] = R * integrate_coherence_right( $\Omega_R$ , w, w_prime, z,  $\mu$ )
286 end
287
288 # -----
289 # RESOLVER AS 3 TRANSIES DE UM SET
290 # -----
291 function solve_signal_for_transitions_left(
292     w_prime_values::Vector{Float64},
293     mu_values::Vector{Float64};
294     delta_min = -500.0,
295     delta_max = -2500.0,
296     N_delta = 300,
297     zspan = (0.0, 0.25),
298     Nz = 50
299 )
300     """
301     Varre  $\delta$  em delta_min:delta_max.
302     Para cada  $\delta$ , resolve a EDO com as 3 transies de um nico set (w_prime,  $\mu$ ).
303     Retorna  $\delta$ vals e um array com as solues de cada transio.
304     """
305      $\delta$ vals = LinRange(delta_min, delta_max, N_delta)
306     z_eval = LinRange(zspan[1], zspan[2], Nz)
307     u0 = [ $\Omega_L$ _initial]
308
309     Omega_s_solutions = []
310
311     for (w_prime,  $\mu$ ) in zip(w_prime_values, mu_values)
312         sol_this = zeros(ComplexF64, length( $\delta$ vals))
313

```

```

314         @threads for j in 1:length(δvals)
315             w = δvals[j]
316             prob = ODEProblem(ODE_left!, u0, zspan, [w, w_prime, μ])
317             sol = solve(prob, Tsit5(), saveat=z_eval)
318             sol_this[j] = conj(sol.u[end][1])
319         end
320
321         push!(Omega_s_solutions, sol_this)
322     end
323     return δvals, Omega_s_solutions
324 end
325
326 function solve_signal_for_transitions_right(
327     w_prime_values::Vector{Float64},
328     mu_values::Vector{Float64};
329     delta_min = -500.0,
330     delta_max = -2500.0,
331     N_delta = 300,
332     zspan = (0.0, 0.25),
333     Nz = 50
334 )
335     """
336     Varre δem delta_min:delta_max.
337     Para cada δ, resolve a EDO com as 3 transies de um nico set (w_prime, μ).
338     Retorna δvals e um array com as solues de cada transio.
339     """
340     δvals = LinRange(delta_min, delta_max, N_delta)
341     z_eval = LinRange(zspan[1], zspan[2], Nz)
342     u0 = [Ω_R_initial]
343
344     Omega_s_solutions = []
345
346     for (w_prime, μ) in zip(w_prime_values, mu_values)
347         sol_this = zeros(ComplexF64, length(δvals))
348
349         @threads for j in 1:length(δvals)
350             w = δvals[j]
351             prob = ODEProblem(ODE_right!, u0, zspan, [w, w_prime, μ])
352             sol = solve(prob, Tsit5(), saveat=z_eval)
353             sol_this[j] = conj(sol.u[end][1])
354         end

```

```

355
356     push!(Omega_s_solutions, sol_this)
357 end
358 return delta_vals, Omega_s_solutions
359 end
360
361 # -----
362 # SOMA DE INTENSIDADES
363 # -----
364 function sum_abs2_over_transitions(Omega_s_solutions)
365     """
366     Recebe um array de 3 vetores (cada um correspondente a uma transio),
367     cada vetor contendo valores complexos de Omega em funo de  $\delta$ .
368     Retorna a soma das intensidades  $|\Omega|^2$  em cada ponto de  $\delta$ .
369     """
370     n_transitions = length(Omega_s_solutions)
371     n_points = length(Omega_s_solutions[1])
372     total = zeros(Float64, n_points)
373     for i in 1:n_transitions
374         total .+= abs2.(Omega_s_solutions[i])
375     end
376     return total
377 end
378
379 # -----
380 # RESOLVER OS 6 SETS E SOMAR APENAS INTENSIDADES
381 # -----
382 function solve_all_sets_left(mu_sets::Vector{Vector{Float64}},
383                             w_prime_values::Vector{Float64})
384     """
385     Resolve para 6 sets, cada um contendo 3 valores de mu.
386     Em cada set, soma as intensidades das 3 transies.
387     Depois soma tudo entre os 6 sets.
388     Retorna:
389         delta_vals
390         total_intensity
391     """
392     n_sets = length(mu_sets)
393     all_intensities_each_set = Vector{Vector{Float64}}(undef, n_sets)
394     delta_vals = nothing
395

```

```

396     for i in 1:n_sets
397         set_i = mu_sets[i]
398          $\delta$ vals, sol_i = solve_signal_for_transitions_left(w_prime_values, set_i)
399         if i == 1
400             delta_vals =  $\delta$ vals
401         else
402             @assert  $\delta$ vals == delta_vals "Varredura inconsistente!"
403         end
404
405         # Soma das intensidades das 3 transies deste set
406         intensities_set_i = sum_abs2_over_transitions(sol_i)
407         all_intensities_each_set[i] = intensities_set_i
408     end
409
410     # Soma total das intensidades de todos os 6 sets
411     total_intensity = zeros(Float64, length(delta_vals))
412     for i in 1:n_sets
413         total_intensity .+= all_intensities_each_set[i]
414     end
415
416     return delta_vals, total_intensity
417 end
418
419 function solve_all_sets_right(mu_sets::Vector{Vector{Float64}},
420                             w_prime_values::Vector{Float64})
421     """
422     Mesmo procedimento para a polarizao direita.
423     """
424     n_sets = length(mu_sets)
425     all_intensities_each_set = Vector{Vector{Float64}}(undef, n_sets)
426     delta_vals = nothing
427
428     for i in 1:n_sets
429         set_i = mu_sets[i]
430          $\delta$ vals, sol_i = solve_signal_for_transitions_right(w_prime_values, set_i)
431         if i == 1
432             delta_vals =  $\delta$ vals
433         else
434             @assert  $\delta$ vals == delta_vals "Varredura inconsistente!"
435         end
436     end

```

```

437     intensities_set_i = sum_abs2_over_transitions(sol_i)
438     all_intensities_each_set[i] = intensities_set_i
439 end
440
441 total_intensity = zeros(Float64, length(delta_vals))
442 for i in 1:n_sets
443     total_intensity .+= all_intensities_each_set[i]
444 end
445
446 return delta_vals, total_intensity
447 end
448
449 # -----
450 # MAIN
451 # -----
452
453 # 1) Resolve para os 6 sets na polarizao ESQUERDA
454 delta_vals_L, intensity_L = solve_all_sets_left(mu_sets_L, w_prime_values)
455
456 # 2) Resolve para os 6 sets na polarizao DIREITA
457 delta_vals_R, intensity_R = solve_all_sets_right(mu_sets_R, w_prime_values)
458
459 # Garante que o vetor de  $\delta$  seja o mesmo para ambas polarizaes
460 @assert delta_vals_L == delta_vals_R
461 delta_vals = delta_vals_L
462
463 # Soma final das intensidades nas duas polarizaes
464 intensity_LplusR = intensity_L .+ intensity_R
465
466 # -----
467 # PLOTAGEM
468 # -----
469 p = plot(
470     delta_vals,
471     intensity_LplusR,
472     xlabel = " $\delta$  (unid.)",
473     ylabel = " $|\Omega_{\text{total}}|$  (a.u.)",
474     title = "Soma das intensidades (L + R)",
475     linewidth = 2,
476     label = "soma das intensidades"
477 )

```

478

479 `display(p)`