UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS

JADER DE SOUZA CABRAL

**Interações entre átomos de Rydberg frios em
processos de transferência populacional**

São Carlos
2013

JADER DE SOUZA CABRAL

***Interações entre átomos de Rydberg frios em processos de
transferência populacional***

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Instituto de Física de São Carlos da Universidade de São Paulo, para obtenção do título de Doutor em Ciências.

Área de concentração: Física Básica
Orientador: Prof. Dr. Luis Gustavo Marcassa

Versão Corrigida

(Versão original disponível na Unidade que aloja o Programa)

São Carlos
2013

AUTORIZO A REPRODUÇÃO E DIVULGAÇÃO TOTAL OU PARCIAL DESTE TRABALHO, POR QUALQUER MEIO CONVENCIONAL OU ELETRÔNICO PARA FINS DE ESTUDO E PESQUISA, DESDE QUE CITADA A FONTE.

Ficha catalográfica elaborada pelo Serviço de Biblioteca e Informação do IFSC,
com os dados fornecidos pelo autor

Cabral, Jader de Souza
Interações entre átomos de Rydberg frios em processos de
transferência populacional / Jader de Souza Cabral; orientador
Luis Gustavo Marcassa –versão corrigida- São Carlos, 2013.
136 p.

Tese (Doutorado - Programa de Pós-Graduação em
Física Básica) -- Instituto de Física de São Carlos,
Universidade de São Paulo, 2013.

1. Átomos de Rydberg frios. 2. Interação de ultralonge
alcance. 3. Transferência de população. 4. Estados $nD + nD$.
5. Estados $nS + nS$ I. Marcassa, Luis Gustavo, orient. II. Título.

Aos meus pais, Rosana e Amarildo, e a minha noiva Rita pela base sólida e inestimável apoio
nos momentos mais difíceis deste trabalho.

AGRADECIMENTOS

Ao meu orientador Prof. Dr. Luis Gustavo Marcassa pelos anos de convivência, pelos ensinamentos e por ter confiado a mim este trabalho.

Ao Prof. Dr. James Shaffer, pela contribuição ao trabalho e pelas esclarecedoras discussões dos experimentos.

Ao Profs. Cléber Renato Mendonça e Lino Misoguti pelo empréstimo de equipamentos quando o nosso quebrava.

Aos companheiros de laboratório Jorge Massayuki, Luis Felipe Gonçalves, Renato Menegatti e Jonathan Tallant por sempre estarem prontos e dispostos a trabalharem juntos. Obrigado por estarem do meu lado, nossas discussões científicas muito me acrescentaram.

Ao Daniel (administrativo) e ao pessoal da oficina mecânica, por me ajudar sempre que necessário no bom andamento do trabalho.

Ao meu grande amigo, Bruno Marangoni, pela longa caminhada juntos dentro e fora da universidade. Obrigado pela sua amizade e por nossas conversas e por me ajudar não só nos problemas científicos, mas em qualquer um que apareça.

Aos meus amigos da universidade, Rafael (Casão), Marcos Hachiya (Marcão), Luis Guilherme (Militar), Filipe (Filipão). Obrigado pelos encontros, conversas e risadas, graças a vocês percebi que não estou sozinho no barco.

Ao meu mais antigo amigo, João Henrique (Zão), que mesmo estando longe sei que posso contar para qualquer “parada”. Muito obrigado pelos conselhos financeiros e pela amizade sincera. Logo irei lhe visitar.

Aos amigos Alexandre Lopes (Tattinho), Carlos Malvino, Júlio Ferraz e Miguel Chain e toda a galera do tatame (que são muitos, não daria para escrever todos aqui). Obrigado pelas horas que passamos juntos todos os dias. São nessas horas, que me renovo, que ganho forças para continuar.

A D. Tânia e o Sr. Daniel, pelos conselhos e palavras amigas, por estarem sempre dispostos a escutar. Obrigado pelo carinho e por serem responsáveis por minha felicidade maior.

A minha noiva, Rita, pessoa que amo e quero continuar por toda vida. Obrigado por cada dia que passamos juntos, por sua compreensão e paciência; e que paciência.

Aos meus pais, Rosana e Amarildo, pelo exemplo e amor incondicional. Por me mostrarem que com determinação e trabalho conseguimos realizar o que muitos duvidam.

À Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo, pela concessão da bolsa de mestrado e pelo apoio financeiro para a realização desta pesquisa.

“O sucesso nasce do querer, da determinação e persistência em se chegar a um objetivo. Mesmo não atingindo o alvo, quem busca e vence obstáculos, no mínimo fará coisas admiráveis.”

José de Alencar

RESUMO

CABRAL, J. S. **Interações entre átomos de Rydberg frios em processos de transferência populacional**. 2013. 133 p. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2013.

Neste trabalho, apresentamos um amplo estudo das interações de longo alcance entre átomos de Rydberg frios na presença de campos elétricos estáticos. Nós observamos a transferência de população do estado quase molecular $nD + nD$ para o estado $(n+2)P$ após excitação pulsada na região de $29 \leq n \leq 41$ em uma amostra de Rb aprisionada em uma armadilha magneto-óptica. A taxa de transferência pode ser manipulada com a presença de campo elétrico estático. Para explicar tais observações um modelo teórico multiníveis foi utilizado. O estudo de evolução temporal da população em $(n+2)P$ mostrou que a dinâmica do processo é condizente com a interpretação clássica de uma transição diabática no domínio temporal. Utilizando um laser de excitação contínuo, realizamos experimentos envolvendo estados $nD + nD$, para $37 \leq n \leq 45$, e estados $nS + nS$, para $39 \leq n \leq 47$, onde foi possível estudarmos processos de transferência de população com resolução da estrutura fina. Também realizamos experimentos, tanto para estados nD quanto nS , para verificar a importância da estrutura hiperfina da estado fundamental no processo de transferência de população.

Palavras-chave: Átomos de Rydberg frios. Interações de ultralongo alcance. Transferência de população. Estados $nD + nD$. Estados $nS + nS$.

ABSTRACT

CABRAL, J. S. **Cold Rydberg atoms interactions in population transfer processes**. 2013. 133 p. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2013.

In this work, we present an extensive study of long-range interactions between cold Rydberg atoms in the presence of static electric fields. We have observed the population transfer from the quasi-molecular $nD + nD$ state to the $(n + 2) P$ state after pulsed excitation for $29 \leq n \leq 41$ in a sample of Rb trapped atoms in a magneto-optical trap. The transfer rate can be manipulated by the static electric field. To explain such observations, a multilevel theoretical model was used. The study of the time evolution of the population $(n + 2) P$ indicates that the dynamics of the process is consistent with a classical interpretation of a nonadiabatic transition in time domain. Using a CW laser excitation, experiments involving states $nD + nD$, for $37 \leq n \leq 45$ states and $nS + nS$ for $39 \leq n \leq 47$, were performed with high spectral resolution. We also performed experiments for both states, nD and nS , to verify the importance of the hyperfine structure of the ground state in the process of population transfer.

Keywords: Cold Rydberg atoms. Ultralong range interactions. Population transfer. $nD + nD$ states. $nS + nS$ states.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1.1 -	A interação de dipolo entre os átomos de Rydberg muda os níveis de energia por uma quantidade ΔE , tirando assim o laser de excitação de ressonância. O estado $ g, g\rangle$ representa dois átomos no estado fundamental, o estado $ g, r\rangle$ e $ r, g\rangle$ representa um átomo no estado fundamental e o outro no estado de Rydberg e o estado $ r, r\rangle$ representa os dois átomos no estado de Rydberg.....	27
Figura 2.1 -	(a) Trilobita calculado por Greene em (25). (b) Potenciais calculados entre dois átomos de Rydberg de lítio próximo ao estado $70P + 70P$ em função da distância internuclear. O R_{LR} é o raio de Le Roy, raio próximo ao limite de dissociação da “molécula”.....	34
Figura 2.2 -	(a) Curvas de potenciais de $89D+89D$ e estados próximos para $M = 2$ e campo elétrico de 28 mV/cm. O símbolo ! mostra a separação de estados assintoticamente degenerados. (b) Curvas de potenciais de $89D + 89D$ e estados próximos para $M = 3$ e campo elétrico de 28 mV/cm. Os círculos em vermelho marcam os cruzamentos evitados....	37
Figura 2.3 -	O espectro de baixo foi obtido com intensidade de 100 mW/cm^2 do segundo laser de excitação. No espectro de cima, com 50 W/cm^2 de intensidade, observa-se o pico de ressonância molecular. O gráfico menor dentro ilustra a região espectral onde as medidas foram tiradas. Extraída de (30).....	39
Figura 2.4 -	O pico de colisão devido às ressonâncias moleculares em $88D + 90D$ concorda com as curvas de potenciais calculadas em (31) como mostra a região dentro do círculo em vermelho. Figura extraída de (30).	40
Figura 2.5 -	População de $nP_{3/2}$ como função da densidade em $nS_{1/2}$ para $29 \leq n \leq 37$. No gráfico de dentro é mostrado para $n = 32$ separadamente. Os pontos são dados experimentais e a curva um ajusta polinomial, que mostra que a dependência é quadrática. Figura extraída de (32).....	41
Figura 2.6 -	(a) Curvas de potenciais próximas ao estado $32\tilde{S} + 32\tilde{S}$ em 500 mV/cm de campo elétrico externo dc. O estado $32\tilde{P} + 31\tilde{P}$ é menos energético para todo R relevante. (b) $C(R) = \langle 32\tilde{S}_{1/2} + 32\tilde{S}_{1/2} 32\tilde{P}_{3/2} + 31\tilde{P}_{3/2} \rangle$. Figura extraída de (32)..	42

Figura 2.7 -	Fração $(n+2)P/nD$ detectada em função do número quântico n . Em vermelho foi aplicado um pulso lento de aproximadamente $6 \frac{V}{cm \mu s}$ na detecção e em preto foi aplicado um pulso rápido de aproximadamente $400 \frac{V}{cm \mu s}$. Figura extraída de (20).....	44
Figura 2.8 -	(a) Energia relativa de $nD + nD$, chamada de dd , e de $(n+2)P + (n-2)F$, chamada de pf . A linha tracejada é o cálculo para infinita separação internuclear e a curva sólida é para $R = 5 \mu m$ considerando apenas interação dipolo-dipolo. Em $n=43$ observa-se a ressonância. (b) Energia relativa em função do campo elétrico dc. Em vermelho tracejado é o cálculo para $R \rightarrow \infty$, a curva sólida em preto é para $R = 5,5 \mu m$. Os caminhos A e B, diabático e adiabático respectivamente, são mostrados em preto tracejados. Figura extraída de (20).....	45
Figura 3.1 -	Foto do sistema de vácuo da câmara de aprisionamento.	49
Figura 3.2 -	Foto da câmara de aprisionamento com destaque para os feixes de aprisionamentos, bobina de campo magnético com eixo na direção z, janela de ZnSe e janela do feixe azul, tubo de vôo e detector MCP.	51
Figura 3.3 -	Foto de dentro da câmara de aprisionamento com destaque para o detector de íon (Channeltron), conjunto de grades de detecção, <i>dispenser</i> , lentes de ZnSe para armadilha de dipolo e tubo de vôo.	52
Figura 3.4 -	Diagrama de níveis do ^{85}Rb com as transições de aprisionamento e de rebombeio.	53
Figura 3.5 -	Montagem óptica do laser de 780 nm utilizada nos experimento. Bloco 1: Absorção saturada, bloco 2: Amplificação óptica e bloco 3: Feixe de excitação de 780 nm.	54
Figura 3.6 -	Interface do Digilock110, o sinal dispersivo representa a transição de aprisionamento onde o laser foi travado.	55
Figura 3.7 -	(a) Configuração MOPA. (b) Desenho da montagem do amplificador óptico. (c) Foto do amplificador operado na mesa óptica.	56
Figura 3.8 -	Caracterização da potência de saída do amplificador óptico em função da corrente aplicada no diodo TA.	57
Figura 3.9 -	Montagem ótica para o laser de CO_2 utilizado no carregamento da armadilha de dipolo.	58

Figura 3.10 -	(a) Amostra preservada na AMO, sem o feixe guia. (b) Deformação da amostra pelo feixe guia.	59
Figura 3.11 -	Diagrama de níveis de excitação por dois fótons para o estado de Rydberg do ^{85}Rb	60
Figura 3.12 -	(a) Sequência temporal de excitação para níveis de Rydberg. (b) Disposição espacial do aprisionamento magneto-óptico. (c) Disposição espacial dos feixes para excitação via dois fótons.	61
Figura 3.13 -	(a) Desenho da cavidade Bow Tie. (b) Suporte para o cristal gerador de segundo harmônico.	62
Figura 3.14 -	Montagem óptica do feixe azul cw de excitação.	63
Figura 3.15 -	Espectro de varredura do laser azul cw ao redor do estado 37D com um campo elétrico dc de 2 V/cm.	64
Figura 3.16 -	Esquema da configuração escada utilizada na EIT.	65
Figura 3.17 -	Varredura do sinal de EIT amplificado e filtrado pelo Lock-in.	66
Figura 3.18 -	(a) Sistema de detecção formado por três grades metálicas e o tubo de vóo, cedido por Jorge D. M. Kondo. (b) Foto da disposição do detector MCP com tela de fósforo, BOS-18. (c) MCP utilizado.	67
Figura 3.19 -	Pulso de campo ionizante aplicado na grade 1 para a detecção de elétrons.	68
Figura 3.20 -	Interface do programa para saídas digitais e analógicas. A cima estão as saídas digitais da PCI 6229 e abaixo estão as saídas analógicas das placas PCI 6229 e PCI 6221. Os dois blocos na parte inferior à esquerda são geradores de pulsos e geradores de rampa utilizados na sequência.	69
Figura 3.21 -	Mapa Stark para o estado 37D.	70
Figura 3.22 -	Deslocamento Stark em função do campo elétrico. Os pontos foram obtidos a partir da posição dos máximos do mapa Stark (Figura 3.21) e a linhas são as curvas calculadas.	71
Figura 4.1 -	Sequência temporal utilizada. O Boxcar integra e faz média do sinal de elétrons.	74
Figura 4.2 -	Sinal de elétrons resolvido no tempo do estado 37D, 39P e 35ℓ em 2 V/cm. A transferência de população de 37D para 39P é aproximadamente 10%.....	75

Figura 4.3 -	População em $39P$ como função de ρ_{37D} . Os dados foram normalizados em ambos os eixos. Os símbolos são os dados experimentais e a linha é o ajuste teórico pela expressão ρ^a_{37D} , onde a é o parâmetro ajustado. O ajuste teórico forneceu $a = 1,9 \pm 0,1$	76
Figura 4.4 -	Constante de taxa de dois corpos, K , como função do estado quântico n para $0,5 \text{ V/cm}$ (círculo branco) e para 2 V/cm (círculo preto). Os pontos são os dados experimentais e as linhas são os cálculos teóricos. Figura extraída de (4.3).	77
Figura 4.5 -	Curvas de potencial do estado $37D + 37D$ e estados próximos para $M = 0$. (a) Em campo elétrico dc de 2 V/cm . (b) Em campo elétrico dc de $0,5 \text{ V/cm}$	78
Figura 4.6 -	(a) Curva de potencial considerando interações quadrupolares e dipolares. (b) Curva de potencial considerando apenas interações dipolares. Ambas as curvas consideram um campo elétrico dc de $0,5 \text{ V/cm}$. O cruzamento em $R \sim 1 \text{ }\mu\text{m}$ aparece apenas quando as interações quadrupolares são consideradas.	79
Figura 4.7 -	(a) Excitação do par $nD + nD$. (b) Aproximação do cruzamento evitado. (c) Transferência de população para $(n+2)P + (n-2)F$	80
Figura 4.8 -	(a) Curva de potencial considerando interações quadrupolares e dipolares. (b) Curva de potencial considerando apenas interações dipolares. Ambas as curvas consideram um campo elétrico dc de $0,5 \text{ V/cm}$. O cruzamento em $R \sim 1 \text{ }\mu\text{m}$ aparece apenas quando as interações quadrupolares são consideradas.	82
Figura 4.9 -	(a) Sequência temporal para variar o tempo de subida do PFI, onde τ é variável. (b) População de $39P$ como função de τ . Claramente observamos que a população de $39P$ não depende deste parâmetro.	83
Figura 4.10 -	Evolução temporal do estado $31P$ até $8 \text{ }\mu\text{s}$	84
Figura 4.11 -	(a) Esquema dos níveis atômicos considerados no modelo. As setas indicam algumas transições que ocorrem a partir de $(n+1)D$ e a partir de $(n+4)P$. (b) Evolução temporal de populações em $31P$ com radiação de corpo negro (N_{31P}), sem radiação de corpo negro (N_{31PB}), e dos estados acima do estado $31P$ (N_{up}). A linha tracejada é obtida através do modelo de equação de taxa.	85

Figura 4.12 -	Taxa de evolução temporal em função do número quântico n . Os quadrados negros são os pontos experimentais para um campo de 0,5 V/cm e os quadrados brancos são dados calculados para o mesmo campo. Os círculos negros são os pontos experimentais para um campo de 2 V/cm e os círculos branco são os dados calculados par o mesmo campo.	87
Figura 5.1 -	Sequência temporal do experimento envolvendo $nD + nD$. O tempo de atraso ente excitação e detecção, Δt , foi fixado em 800 ns.	90
Figura 5.2 -	Sinal de elétrons para 43D para campo elétrico externo dc nulo.	91
Figura 5.3 -	Diferença de energia entre os estados $nD + nD$ e $(n+2)P_{1/2} + (n-2)F_{7/2}$. Em $n = 43$, notamos a ressonância Förster.	92
Figura 5.4 -	Dependência da população em 45P em função da densidade. A curva vermelha é o ajuste teórico com a seguinte expressão $y = x^A$	93
Figura 5. 5 -	Sinal de varredura do estado 45D para três campos distintos, 0 V/cm (vermelho), 0,5 V/cm (azul) e 2 V/cm (verde). O sinal de referência de EIT é o sinal em preto. Foi usada a representação $ j, m_j\rangle$ para o campo de 2 V/cm e $ j\rangle$ para os demais, onde j é o momento angular e m_j sua projeção na direção do campo elétrico.	94
Figura 5.6 -	(a) Constante de taxa de colisão, K , em função do número quântico n medida em campo de 0,5 V/cm . Em preto o momento angular do nD é $j = 3/2$ e em vermelho é $j = 5/2$. (b) Probabilidade de Landau–Zener calculada a partir das curvas de potenciais. Novamente em preto é para o momento angular $j = 3/2$ e em vermelho é para $j = 5/2$	95
Figura 5.7 -	(a) Constante de taxa de colisão, K , em função do número quântico n medida em campo de 2 V/cm. (b) Probabilidade de Landau–Zener calculada a partir das curvas de potenciais. Cada cor distingue um estado diferente.	96
Figura 5.8 -	Evolução temporal da fração N_{40P}/N_{38D} até 8 μs . (a) Campo elétrico de 0,5 V/cm. (b) Campo elétrico de 2 V/cm	98
Figura 5.9 -	Inclinação, ou taxa, da evolução temporal em função do número quântico n . (a) Campo elétrico de 0,5 V/cm. (b) Campo elétrico dc de 2 V/cm.	99
Figura 5.10 -	(a) Fração da população 39P/37D em campo de 0,5 V/cm. (b) Fração da população 39/37D em campo de 2 V/cm. Os pontos são dados experimentais e a linha verde é a curva teórica do modelo de equação de taxa envolvendo apenas radiação de corpo negro.	101

Figura 5.11 -	Modelo de quatro níveis utilizado, onde os termos $W1$ e $W2$ são termos de bombeio e os γ são termos de decaimento (induzido e espontâneo).	102
Figura 5.12 -	Sequência temporal do experimento, $\Delta t = 800$ ns. (a) Inicialmente o tempo de excitação era de 100ns. (b) Tempo de excitação de 1 μ s e $\Delta T = 0$. (c) Variamos ΔT até 82 μ s.	104
Figura 5.13 -	Esquema de excitação direta do estado 45P a partir do estado hiperfino fundamental $ 5P_{3/2}, F = 2\rangle$. Os valores de ΔE podem ser encontrados na Figura 5.3.	105
Figura 5.14 -	(a) Modelo para escrever as equações de taxa dos estados hiperfinos do ^{85}Rb . (b) Solução do modelo, em 2 μ s praticamente toda a população já está em $ 5S_{1/2}, F = 2\rangle$	106
Figura 5.15 -	Razão da população em 45P com a população em 43D para os dois estados de momento angular $j = 3/2$ (em azul) e $j = 5/2$ (em vermelho) em função do atraso com relação ao feixe de excitação de 780 nm, ΔT . O Campo elétrico na amostra era de 0,5 V/cm..	107
Figura 5.16 -	Em preto temos a varredura do estado 43S e em vermelho o ajuste teórico pela lorentziana $y = y_0 + \frac{2A}{\pi} \frac{\Gamma}{4(x-x_c)^2 + \Gamma^2}$, que nos forneceu $\Gamma \cong 16$ MHz como largura efetiva.	108
Figura 5.17 -	Comparação entre a razão da população em 45P com a população em 43D para os dois estados de momento angular $j = 3/2$ (em azul) e $j = 5/2$ (em vermelho) e o modelo teórico (curva preta) de probabilidade de absorção para 2000 fótons.	110
Figura 6.1 -	Sequência temporal do experimento envolvendo $nS + nS$. O tempo de atraso ente excitação e detecção, Δt , foi fixado em 800 ns.	112
Figura 6.2 -	(a) Dependência da população no estado 39P em função da densidade ρ_{39S} em campo elétrico externo nulo. A curva vermelha é o ajuste teórico com a seguinte expressão $y = x^A$	113
Figura 6.3 -	Fração medida da população transferida nP/nS em função do número quântico principal, n , para três campos elétricos externos dc diferentes: 0 V/cm (em preto), 0,5 V/cm (em azul) e 2 V/cm (em vermelho).	114
Figura 6.4 -	População do estado nS medida no intervalo de $39 \leq n \leq 47$. Os pontos em preto são para campo elétrico externo dc nulo, os pontos em azul são para 0,5 V/cm e os em vermelhos são para 2 V/cm.	115

Figura 6. 5 -	Curvas de potenciais ao redor de $45S + 45S$, em campo elétrico nulo, calculadas por Dr. Shaffer, nosso colaborador.	115
Figura 6.6 -	(a) Contribuição do vazamento de frequência em + 3 GHz, representado por + e em -3 GHz, representado por -. (b) Momento de dipolo das transições, mostrando que não se pode ignorar o acoplamento de $43D-45P$	116
Figura 6.7 -	Evolução temporal da fração N_{39P}/N_{39S} até 8 μs . Em azul são os dados em campo elétrico de 0,5 V/cm e em vermelho os dados em 2 V/cm. ..	117
Figura 6.8 -	Inclinação, ou taxa, da evolução temporal da fração N_{nP}/N_{nS} em função do número quântico n . Em azul são os dados em campo elétrico de 0,5 V/cm e em vermelho os dados em 2 V/cm.	118
Figura 6.9 -	Sequência temporal do experimento $nS + nS$, $\Delta t = 800$ ns. (a) Inicialmente o tempo de excitação era de 100ns. (b) Tempo de excitação de 1 μs e $\Delta T = 0$. (c) Variamos ΔT até 82 μs	120
Figura 6.10 -	(a) Esquema de excitação do estado $43P$ a partir do estado hiperfino fundamental $ 5P_{3/2}, F = 2\rangle$. As setas vermelhas representam os fótons de 780 nm e as setas azuis os fótons de 480 nm. (b) Diferença de energia assintótica entre estados de pares de Rydberg em função do número quântico n	121
Figura 6.11 -	(a) Modelo para escrever as equações de taxa dos estados hiperfinos do ^{85}Rb . (b) Solução do modelo, em 2 μs praticamente toda a população já está em $ 5S_{1/2}, F = 2\rangle$	122
Figura 6.12 -	Os pontos em azul é a razão da população em $43P$ pela população em $43S$ medida em função do atraso com relação ao feixe de excitação de 780 nm, ΔT . O campo elétrico na amostra é de 0,5 V/cm. A curva em preto é a probabilidade de absorção em função do tempo.	123

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	25
2	REVISÃO DA LITERATURA	31
2.1	Dependência da Interação Dipolar com o Número Quântico Principal entre Átomos de Rydberg.....	31
2.2	Cálculo dos Potenciais de Interação envolvendo átomos de Rydberg	33
2.3	Interação entre Átomos de Rydberg de Cs em Amostras com Campo Elétrico Externo DC....	36
2.4	Interação entre Átomos de Rydberg em Potenciais Repulsivos	40
2.5	Influência do Campo de Ionização no Potencial de Interação entre Átomos de Rydberg.....	43
2.6	Armadilhas ópticas de dipolo	45
3	MONTAGEM E MÉTODOS EXPERIMENTAIS	49
3.1	Câmara de Aprisionamento de Ultra Alto Vácuo.....	49
3.2	Sistema Óptico de Aprisionamento	52
3.2.1	Armadilha Magneto- Óptica	54
3.2.1	Armadilha de Dipolo	58
3.3	Sistema de Excitação para Níveis de Rydberg	60
3.3.1	Excitação com Laser Azul Pulsado	61
3.3.2	Excitação com Laser Azul Contínuo (cw) - Construção da Cavidade.....	62
3.4	Sistema de Referência para o Laser Azul – EIT.....	64
3.5	Sistema para Detecção de Átomos de Rydberg	66
3.6	Controle Analógico e Digital de Saídas Sincronizadas e Aquisição de Dados	68
3.7	Calibração do Campo Elétrico dc Residual.....	70

4	ESTUDO DE TRANSFERÊNCIA DE POPULAÇÃO A PARTIR DE EXCITAÇÃO PULSADA DOS ESTADOS ND + ND.....	73
4.1	Transferência de População	74
4.2	Cálculo do Potencial.....	77
4.3	Constante de Taxa de Colisão – Modelo Semiclássico Landau-Zener	79
4.4	Evolução Temporal - Discussão	83
5	TRANSFERÊNCIA DE POPULAÇÃO ENVOLVENDO ND + ND COM EXCITAÇÃO CONTÍNUA	89
5.1	Transferências de População em Função do Número Quântico n	89
5.2	Evolução Temporal da Transferência de População	97
5.3	Dependência da População em nD e em nP com o Tempo de Excitação	100
5.4	Influência da Estrutura Hiperfina do Estado Fundamental na População (n+2)P	102
6	TRANSFERÊNCIA DE POPULAÇÃO ENVOLVENDO NS + NS COM EXCITAÇÃO CONTÍNUA	111
6.1	Transferências de População em Função do Número Quântico n	111
6.2	Evolução Temporal da Transferência de População	116
6.3	Influência da Estrutura Hiperfina do Estado Fundamental na População nP	119
7	CONCLUSÃO E PERSPECTIVAS	125
	REFERÊNCIAS	129

1 INTRODUÇÃO

O estudo de átomos de Rydberg, ou átomos com elevado número quântico principal, n , atinge um vasto campo de pesquisa científica abrangendo diversas áreas de fenômenos quânticos devido às suas propriedades exacerbadas (1-2). Apesar de não existir uma definição sobre qual deve ser o número quântico para que um átomo seja considerado átomo de Rydberg, existem algumas sugestões históricas. Quando os experimentos eram realizados com átomos quentes, átomos eram considerados de Rydberg quando $7 \leq n \leq 20$. Em astronomia, átomos são considerados de Rydberg com $n \approx 100$. Contudo, o Prof. Daniel Kleppner tem uma definição mais geral e basta que $n > 1$! Na grande maioria dos experimentos e cálculos envolvendo átomos de Rydberg realizados pela comunidade científica de átomos frios, seu número quântico principal n é da ordem de dezenas, geralmente $n > 30$; sendo assim, muitas propriedades dos átomos de Rydberg são exageradas quando comparadas com um átomo no estado fundamental.

Como exemplo, podemos citar o raio orbital, que em átomos de Rydberg escala com n^2 , o que leva a uma dependência de n^4 de sua seção de choque, ou seja, átomos de Rydberg são enormes perante átomos no estado fundamental. Em um domínio típico dos experimentos, $40 \leq n \leq 100$, o raio orbital é da ordem 10^3 a 10^4 vezes maior que o raio de Bohr. Para se ter uma idéia, este tamanho é quase dez vezes o tamanho típico de uma bactéria. Outros exemplos incluem a energia de ligação, que escala com n^{-2} , o tempo de vida radiativo, que escala com n^3 ou n^5 , dependendo do momento angular do estado em questão. Portanto, os elétrons dos átomos de Rydberg são fracamente ligados e extremamente sensíveis a perturbações externas como campos elétricos ac e dc (estáticos) e radiação de corpo negro. Entretanto, eles exibem tempos de vidas extremamente longos, da ordem de centenas de microssegundos, e largura de linha de transição estreitas, da ordem de centésimos de MHz.

Historicamente, os primeiros experimentos envolvendo átomos de Rydberg foram realizados com feixes atômicos e células de vapor (3-4). Nestes experimentos eram utilizados átomos quentes que saíam em forma de feixe de um forno a centenas de kelvin de temperatura por um pequeno orifício; situação esta que prejudicava a construção de um sistema coerente, uma vez que o movimento térmico dos átomos gerava efeitos de decoerência. Com o avanço das técnicas de resfriamento e aprisionamento a laser (5), entretanto, foi aberto um novo mundo de possibilidades para se estudar sistemas coerentes envolvendo átomos de Rydberg. A habilidade de se preparar amostras densas (10^{10} a 10^{12} átomos/cm³) em armadilhas

magneto-ópticas e armadilhas ópticas de dipolo a baixa temperatura (centenas de μK) permitiu à comunidade científica reduzir drasticamente os efeitos de movimento térmico e realizar experimentos que são praticamente estacionários na escala de tempo experimental, aproximadamente alguns microssegundos. Estes sistemas de Rydberg frios são chamados na literatura de “gases de Rydberg congelados” (6-7).

Embora todas estas propriedades citadas dos átomos de Rydberg os tornem interessantes, o que mais estimula a maioria dos estudos experimentais e teóricos recentes, inclusive este trabalho de doutorado, é sua forte interação de longo alcance. Dois átomos de Rydberg neutros separados por microns de distância interagem entre si devido à forte interação dipolar, uma vez que o momento de dipolo de transição para estados próximos escala com n^2 e sua polarizabilidade elétrica escala com n^7 . Como discutiremos neste trabalho, não só a interação dipolar é importante para a dinâmica destes átomos; ordens maiores de interação, como dipolo-quadrupolo e quadrupolo-quadrupolo, também influenciam em sua dinâmica. O entendimento preciso de como estas interações de longo alcance funcionam é essencial para o avanço de áreas como informação quântica.

Em um trabalho publicado em 2000, Jaksch e colaboradores (8) propuseram usar o bloqueio de excitação de Rydberg, baseado nas interações de dipolo-dipolo, para produzir portas lógicas quânticas. Tal bloqueio de excitação ocorre entre átomos de Rydberg devido à forte interação de longo alcance entre eles; o que acontece é a supressão da excitação simultânea fornecida por um mesmo pulso. Este efeito de bloqueio de excitação já foi verificado também em outros sistemas quânticos que interagem fortemente, como elétrons sob ação da interação de Coulomb e fótons acoplados em cavidades ópticas. O bloqueio de Rydberg se mostrou como ferramenta básica para computação quântica (8,9,10), onde os estados fundamentais hiperfinos do átomo fariam o papel do qubit, o bit quântico, e portas lógicas como a CNOT (controlled –NOT) poderiam ser implementadas (11).

Trabalhos recentes verificaram experimentalmente que quando dois átomos iguais estão separados por distâncias de alguns microns, apenas um deles pode ser excitado para o estado de Rydberg (12,13). A interação de dipolo entre eles é tão grande que altera os níveis de energia dos átomos, fazendo com que o laser de excitação saia da condição de ressonância, impossibilitando assim a excitação do segundo átomo. A Figura 1.1 ilustra o mecanismo.

Figura 1.1

- A interação de dipolo entre os átomos de Rydberg muda os níveis de energia por uma quantidade ΔE , tirando assim o laser de excitação de ressonância. O estado $|g, g\rangle$ representa dois átomos no estado fundamental, o estado $|g, r\rangle$ e $|r, g\rangle$ representa um átomo no estado fundamental e o outro no estado de Rydberg e o estado $|r, r\rangle$ representa os dois átomos no estado de Rydberg.

O que acontece então é que a distâncias menores que R_b , raio de bloqueio, apenas um dos dois átomos sofre a excitação. Imaginando que a amostra tenha não dois átomos, mas muitos átomos, entre os N átomos que estiverem dentro de uma esfera R_b apenas um deles será excitado. Esta excitação coletiva, compartilhada entre os N átomos dentro da esfera, da origem ao que chamamos de superátomo, (14). Do ponto de vista experimental é extremamente interessante trabalhar com superátomos, uma vez sua descrição é similar a de um átomo simples, sua frequência de Rabi é escalonada por $\sqrt{N}$ (15) e não existem as dificuldades experimentais de se aprisionar e detectar apenas um dos N átomos.

Entretanto é importante mencionar que o sucesso das pesquisas nas áreas de informação e computação quântica está fortemente ligado ao fato de se obter sistemas experimentais coerentes. Qualquer fonte de decoerência impossibilita a criação do qubit, uma vez que estados emaranhados são destruídos se fontes de decoerência, como por exemplo, colisões, levarem o sistema para outros estados atômicos. Outro fato importante é a obtenção de amostras em alta densidade, onde a interação se torna importante.

É importante mencionarmos que atualmente a pesquisa com átomos de Rydberg frios não é restrita à área de computação e informação quântica. Diversos grupos de pesquisas utilizam esse sistema de gases de Rydberg congelados para estudos na área de colisões (16-

18), de transferência de energia (6,19-20), em medidas de tempo de vida (21), estudo de plasma (22-23) e astrofísica (24).

O objetivo deste trabalho de doutorado é explorar ao máximo as interações entre esses “átomos de Rydberg congelados”, a uma temperatura de aproximadamente 200 μK , em uma armadilha magneto-óptica. Em trabalho de colaboração com o professor Dr. James Shaffer, da Universidade de Oklahoma, obtivemos avanços significativos no entendimento do processo de dinâmica dessas amostras frias. Nos experimentos envolvendo estados nS e nD , verificamos que o processo dinâmico de transferência de população para estados nP é um processo binário, ou seja, envolve dois átomos. Exploraremos nesta tese os processos de transferência de população $nD + nD \rightarrow (n+2)P + (n-2)\ell$, onde $\ell \geq 3$ e $nS + nS \rightarrow nP + (n-1)P$ via excitação pulsada (caso nD) e via excitação contínua (casos nD e nS), na presença de campos elétricos estáticos. Desta maneira, pretendemos avançar no conhecimento dos mecanismos de interação entre átomos de Rydberg frios e, conseqüentemente, entender os mecanismos que causam a decoerência do sistema e impossibilitam a criação do qubit.

No capítulo 2, fazemos uma análise da literatura existente na área de interações entre átomos de Rydberg frios, apresentando os principais resultados publicados que motivaram este trabalho de doutorado. Fazemos também uma breve introdução aos fundamentos das armadilhas ópticas de dipolo.

No capítulo 3, descrevemos de maneira detalhada nossa montagem experimental, bem como os métodos experimentais utilizados no aprisionamento da amostra atômica, na excitação e detecção dos átomos de Rydberg. Abordamos a construção do novo laser para excitação contínua, além de todo sistema de aquisição de dados e calibração do campo elétrico estático residual.

No capítulo 4, apresentamos os resultados e discussões dos experimentos envolvendo excitação pulsada de estados nD . Estudamos em detalhes o processo de transferência de população $nD + nD \rightarrow (n+2)P + (n-2)\ell$, onde $\ell \geq 3$ na presença de campos elétricos estáticos externos, para $29 \leq n \leq 41$. Analisamos a influência de radiação de corpo negro no processo, bem como a evolução temporal da população produto nP .

No capítulo 5, abordamos o mesmo processo colisional do capítulo 4, $nD + nD \rightarrow (n+2)P + (n-2)\ell$, porém via excitação contínua. Com um laser de excitação cw de largura de linha estreita, ~ 2 MHz, construído em nosso laboratório, foi possível resolver a estrutura fina no processo colisional. Fazemos uma ampla discussão do processo, comparando os resultados

da excitação pulsada com os da excitação contínua. Também analisamos a importância da estrutura hiperfina do estado fundamental no processo de transferência de população.

No capítulo 6, estudamos o processo colisional $nS + nS \rightarrow nP + (n-1)P$ também na presença de campos elétricos estáticos via excitação contínua. Discutimos como a população produto nP depende da densidade da amostra, bem como sua dependência com o campo elétrico estático. Analisamos também a evolução temporal da população produto e também a influência da estrutura hiperfina do estado fundamental no processo colisional.

Por fim, o capítulo 7 é reservado às conclusões obtidas deste trabalho, além de discussões de futuros experimentos propostos que podem ser úteis tanto para o avanço na área de átomos de Rydberg frios quanto para a área de computação e informação quântica.

2 REVISÃO DA LITERATURA

Neste capítulo, inicialmente apresentamos alguns conceitos básicos no estudo de interações entre átomos de Rydberg e em seguida fazemos uma revisão literária dos principais resultados publicados envolvendo interações entre átomos de Rydberg frios. Também abordaremos brevemente os conceitos básicos que envolvem a técnica de aprisionamento óptico de dipolo.

2.1 Dependência da Interação Dipolar com o Número Quântico Principal entre Átomos de Rydberg

A abordagem mais simples no estudo de interações entre átomos de Rydberg considera que cada átomo pode ser descrito por um dipolo elétrico. Desta forma, o potencial de interação entre dois dipolos elétricos pode ser obtido usando teoria de perturbação de primeira e segunda ordem, as quais nos permitem obter a interação dipolo-dipolo e a interação de Van der Waals. Sem dúvida, é de se esperar que tais interações dependam do número quântico principal, n .

Do eletromagnetismo clássico, temos que o campo elétrico de um dipolo formado por duas cargas e separadas por d_1 de distância, $\vec{\mu}_1 = e\vec{d}_1$, no ponto P a uma distância R , em primeira ordem de aproximação de $R \gg d_1$, é dado pela equação (2.1). Logo, a interação de um outro dipolo $\vec{\mu}_2 = e\vec{d}_2$, de carga e separados por d_2 , em P com o campo de $\vec{\mu}_1$, $V_{dd} = \vec{\mu}_2 \cdot \vec{E}_1$, nos fornece o potencial de interação entre dois dipolos dado pela equação (2.2).

$$\vec{E}_1 = \frac{e}{4\pi\epsilon_0} \left\{ \frac{-\vec{d}_1}{R^3} + \frac{3\vec{R}(\vec{d}_1 \cdot \vec{R})}{R^5} \right\} \quad (2.1)$$

$$V_{dd} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left\{ \frac{\vec{\mu}_1 \cdot \vec{\mu}_2}{R^3} - \frac{3(\vec{\mu}_1 \cdot \vec{R})(\vec{\mu}_2 \cdot \vec{R})}{R^5} \right\} \quad (2.2)$$

Onde e é a carga do elétron e ε_0 é a permissividade elétrica no vácuo.

O cálculo mais simples da energia entre dois átomos de Rydberg, separados por R , é feito considerando apenas a interação dipolar entre eles. Para isso, devemos resolver o hamiltoniano $H = H_1^{(0)} + H_2^{(0)} + V_{dd}$, onde os dois primeiros termos são os níveis de energia do átomo 1 e 2 respectivamente e V_{dd} é interação dipolar entre eles tomada como perturbativa. Usando teoria de perturbação independente do tempo, encontramos que a correção em primeira ordem na energia é dada por $E_n^{(1)} = \langle n | V_{dd} | n \rangle$ e em segunda ordem é $E_n^{(2)} = \sum_{m \neq n} \frac{|\langle m | V_{dd} | n \rangle|^2}{E_n^{(0)} - E_m^{(0)}}$, onde $|n\rangle$ é o auto estado com autovalor $E_n^{(0)}$ (não perturbado) e $|m\rangle$ são todos os outros auto estados não perturbados. Observe que em segunda ordem os estados que contribuem mais para a soma são aqueles mais próximos de $|n\rangle$.

Quando tomada apenas a primeira ordem de correção na energia, dizemos que a interação é chamada dipolo-dipolo e usualmente escrevemos $V_{dd}^{(1)} = \pm \frac{C_3}{R^3}$. Tal interação está presente em amostras que possuem dipolos permanentes. Já quando temos dipolos induzidos por campos eletromagnéticos, a interação é mais fraca, chamada de interação de Van der Waals, que corresponde à segunda ordem na correção de energia. Sendo escrita usualmente como $V_{vdW} = \pm \frac{C_6}{R^6}$, a dependência com R^{-6} vem do módulo ao quadrado do elemento de matriz da interação V_{dd} . Os valores de C_3 e C_6 envolvem o cálculo das funções de onda que não é analítico e requer processo computacional iterativo.

Uma alternativa para termos idéia da ordem de magnitude destes coeficientes é analisarmos suas dependências com o número quântico principal, n . O modelo teórico usado para descrevermos um átomo de Rydberg é muito similar ao de um átomo hidrogenóide, pois em suas órbitas grandes, o elétron de valência (elementos alcalinos) enxerga apenas a carga líquida do núcleo, ou seja, $+1$. Sendo assim, o modelo semiclássico de Bohr é uma ótima aproximação para átomos alcalinos em estado de Rydberg.

Escrevendo o equilíbrio de forças sentido pelo elétron em uma orbita circular de Bohr em torno do núcleo e postulando a conservação do momento angular, encontramos que o raio da órbita atômica é proporcional a n^2 e a energia é proporcional a $-n^{-2}$. Desta maneira, podemos afirmar que a dependência de C_3 é com n^4 , pois temos o produto de dois dipolos, ou seja, dois raios. Já a dependência com C_6 é n^{11} , pois o produto de dipolos vai ao quadrado (n^8) e a diferença de energia entre estados adjacentes vai com n^{-3} , uma vez que $\frac{dE(n)}{dn} \propto \frac{d(n^{-2})}{dn} = n^{-3}$.

Desta maneira, podemos concluir que as energias de interação de dipolo entre dois átomos de Rydberg (altos valores de n) são muitos maiores do que entre átomos ou moléculas no estado fundamental da ordem até de dezenas de microns. Tal característica torna os átomos de Rydberg objetos valiosos de estudo de diversas áreas do conhecimento, entre elas, a computação quântica e a geração de estados emaranhados, como discutimos no capítulo anterior.

2.2 Cálculo dos Potenciais de Interação envolvendo átomos de Rydberg

O primeiro artigo teórico a apresentar os cálculos de potenciais entre um átomo de Rydberg e um átomo no estado fundamental foi publicado por Greene C. H., Dickinson A. S. e Sadeghpour H. R em 2000, (25). Tais potenciais possuem estados ligados chamados de Trilobita. A nomeação advém do fato de o quadrado de sua função de onda se parecer com um trilobita, animal que viveu no período Paleozóico, a 400 milhões de anos atrás. Dois anos depois, Boisseau e colaboradores (26) estenderam estes cálculos e mostraram os potenciais de interação entre dois átomos de Rydberg no estado nP , além de calcularem estados ligados para estes potenciais. Em seguida, Singer K. e colaboradores publicaram em (27) o cálculo de potenciais para os estados $nS + nS$, $nP + nP$ e $nD + nD$ para os seguintes pares atômicos: Rb – Rb, Na – Na, K – K, Li – Li, Cs – Cs. Todos estes cálculos foram feitos a partir de métodos perturbativos e uma descrição do método simplificada pode ser encontrada em (28). A Figura 2.1 (a) mostra o Trilobita de Greene, Dickinson e Sadeghpour e a Figura 2.1 (b) os potenciais próximo a $70P + 70P$ do Li – Li calculados em (27).

Figura 2.1 – (a) Trilobita calculado por Greene em (25). (b) Potenciais calculados por (27) entre dois átomos de Rydberg de lítio próximo ao estado $70P + 70P$ em função da distância internuclear. O R_{LR} é o raio de Le Roy, raio próximo ao limite de dissociação da “molécula”.

Entretanto, esses cálculos de método perturbativo são úteis do ponto de vista de modelar o experimento apenas quando o termo $-C_n/R^n$ é menor do que a separação energética entre os estados. Quando não existe esta condição, o problema deve ser resolvido através da diagonalização do hamiltoniano. É com esta abordagem que os cálculos de potenciais para explicar nossos experimentos foram feitos em colaboração com o Prof. Dr. James Shaffer, da universidade de Oklahoma.

Este cálculo não envolve apenas interações dipolares, mas também interações de ordens mais altas como: dipolo-quadrupolo, quadrupolo-quadrupolo, além de efeito Stark e estrutura fina. Os potenciais de interação são calculados em três passos: (1) Cálculo das energias (autovalores) e base de estados (autovetores) de um único átomo sob efeito de deslocamento Stark; (2) seleção de uma base apropriada (conjunto de estados) truncada para descrever o par atômico; e (3) diagonalização do Hamiltoniano no par de bases onde o efeito

Stark foi considerado para o par atômico. O elemento que deve se diagonalizado pode ser escrito na base do efeito Stark como sendo:

$$\langle \tilde{\alpha} | \langle \tilde{\beta} | H(R) | \tilde{\alpha}' \rangle | \tilde{\beta}' \rangle = \delta_{\alpha\alpha'} \delta_{\beta\beta'} E_{\alpha\beta} + \langle \tilde{\alpha} | \langle \tilde{\beta} | H_{DD}(R) + H_{DQ}(R) + H_{QQ}(R) | \tilde{\alpha}' \rangle | \tilde{\beta}' \rangle \quad (2.3)$$

onde $|\tilde{\alpha}\rangle$ e $|\tilde{\beta}\rangle$ denotam o conjunto de estados quânticos incluindo estrutura fina e $|\tilde{\alpha}'\rangle$ e $|\tilde{\beta}'\rangle$ denotam os estados quânticos alterados pelo efeito Stark. A distância internuclear R é orientada na direção do campo elétrico, definida como direção z . O termo $E_{\alpha\beta} = E_{\alpha} + E_{\beta}$ representa a mudança assintótica de energia, $R \rightarrow \infty$, devida ao efeito Stark. Os termos $H_{DD}(R)$, $H_{DQ}(R)$ e $H_{QQ}(R)$ correspondem às interações dipolo-dipolo, dipolo-quadrupolo e quadrupolo-quadrupolo respectivamente. Também é possível calcular os novos auto estados após a diagonalização da matriz, que podem ser escritos como

$$|\psi\rangle(R) = \sum C_{\alpha\beta}(R) |\tilde{\alpha}\rangle |\tilde{\beta}\rangle \quad (2.4)$$

onde $C_{\alpha\beta}$ é o coeficiente de expansão na base alterada pelo efeito Stark. Os auto estados mostram como a interação mistura os estados atômicos assintóticos. Uma vantagem de se calcular primeiro a base alterada pelo efeito Stark é que fica mais fácil de separar os efeitos do campo elétrico de fundo, ou residual, do campo das interações. A escolha da direção do campo elétrico ao longo do eixo internuclear é feita para que se possa ignorar os efeitos da interação dipolar estática induzida pelo campo elétrico.

2.3 Interação entre Átomos de Rydberg de Cs em Amostras com Campo Elétrico Externo DC

Schwettmann e colaboradores (29), coordenados pelo Prof. Dr. James Shaffer, da universidade de Oklahoma foram os primeiros a utilizarem o cálculo descrito acima em amostras de átomos de Rydberg de Cs. Os cálculos de potenciais foram feitos para o estado $89D+89D$ e revelaram importantes características até então não previstas pela teoria perturbativa. Tais resultados mostraram que a física atômica que descreve átomos de Rydberg frios é dominada por interações colombianas de zona próxima e que essas interações de longo alcance são facilmente modificadas por pequenos campos elétricos DC.

O cálculo dos potenciais dos pares atômicos próximos de $89D + 89D$ mostraram que as mudanças de energias observadas são inteiramente devidas às interações ressoantes próximas. Para o caso particular de campo elétrico nulo, as curvas de potenciais reproduzem basicamente os cálculos apresentados por Singer e colaboradores em (27), através do método perturbativo com algumas diferenças na escala de 10^{-3} cm^{-1} . A diferença mais interessante revelada pelo método de diagonalização é a presença de cruzamentos evitados entre os potenciais fortemente atrativos. Deve-se destacar que este trabalho, diferentemente do trabalho de Singer e colaboradores, considera a estrutura fina no processo de diagonalização.

Os autores apontaram duas importantes mudanças nas curvas de potenciais próxima a $89D + 89D$ quando foi adicionada a presença de um pequeno campo elétrico dc de 28 mV/cm no cálculo. A primeira delas foi a separação de estados de pares atômicos assintoticamente degenerados, em $R \rightarrow \infty$, e a segunda foi o aparecimento de cruzamentos evitados entre estados que não são acoplados via interação de dipolo em campo elétrico nulo. Segundo os autores, o campo elétrico externo dc causa um acoplamento ressoante na forma $1/R^3$ entre os estados assintoticamente degenerados e a interação quadrupolo-quadrupolo cria um acoplamento ressoante, na forma $1/R^5$, entre estes estados. O primeiro efeito é devido à mistura de estados pelo efeito Stark e o segundo é devido à presença de momento de quadrupolo não nulo em estados $89D$ do césio. O símbolo “!” na Figura 2.2 (a) ilustra separação de estados assintoticamente separados em campo de 28 mV/cm e na Figura 2.2 (b) os cruzamentos evitados podem ser vistos na região marcada pelo círculo vermelho.

Figura 2.2 – (a) Curvas de potenciais de 89D+89D e estados próximos para $M = 2$ e campo elétrico de 28 mV/cm. O símbolo ! mostra a separação de estados assintoticamente degenerados. (b) Curvas de potenciais de 89D + 89D e estados próximos para $M = 3$ e campo elétrico de 28 mV/cm. Os círculos em vermelho marcam os cruzamentos evitados.

Para distâncias internucleares pequenas, $R \leq 4 \mu\text{m}$, o movimento atômico em potenciais atrativos levará os átomos para um verdadeiro “*spaguetti*” de curvas de potenciais dos estados $n = 86$ e $n = 87$ com alto momento angular ($\ell \geq 3$), chamados na Figura 2.2 (b) de Stark fan. Esta alta densidade de curvas está presente inclusive quando o campo elétrico externo é nulo. O movimento neste “*spaguetti*” de potenciais através de cruzamento evitados podem levar a transferência de população para estados de maior n e eventual ionização Penning. Ainda neste trabalho, a teoria semi-clássica de Landau – Zener foi utilizada para calcular a probabilidade de transição nestes cruzamentos evitados.

A taxa de transferência de energia ao redor de 89D + 89D em $R = 6 \mu\text{m}$ foi calculada como sendo 35 – 70 MHz, ou seja, foi observado que a transferência de energia envolve muitos estados e que a escala de tempo do acoplamento de estados 89D em $R = 6 \mu\text{m}$ é

centenas de nanossegundos. Essa taxa varia dependendo da estrutura fina do estado. Para experimentos realizados na escala de tempo menor que 100 ns, o par atômico 89D se comportará como um pacote de onda que dinamicamente interage com os potenciais. Entretanto, para experimentos em escala de tempo maior, o par atômico excitado se comportará como um auto estado estacionário. Como apontado por Schwettmann e colaboradores, existem muitos estados com taxa de transição similares o que leva a um processo de transferência de energia difícil de ser modelado de modo geral.

Um ano depois, Overstreet K. e colaboradores (30) pertencentes ao mesmo grupo do Prof. Dr. Shaffer publicaram resultados experimentais envolvendo colisões foto-iniciadas entre átomos de Rydberg de césio e utilizaram as curvas de potenciais calculadas em (29) para justificar o aparecimento de ressonância moleculares medidas próximas ao estado $89D + 89D$. Neste experimento, os átomos de Rydberg são excitados a partir de átomos de césio frios, aprisionados em uma armadilha magneto-óptica. O laser de aprisionamento foi dessintonizado 15 MHz abaixo da transição $6S_{1/2}(F = 4) \rightarrow 6P_{3/2}(F' = 5)$ e os átomos de Rydberg eram excitados via dois fótons para estados com número quântico, n , próximo de 90. O campo elétrico externo dc da amostra era de aproximadamente 20 mV/cm. Os autores observaram que quando a intensidade do laser responsável pelo segundo fóton de excitação foi aumentada, um pico de ressonância molecular apareceu no espectro algumas dezenas de MHz abaixo do estado 89D. A Figura 2.3 ilustra o espectro obtido por Overstreet e colaboradores em (30).

Figura 2.3 – O espectro de baixo foi obtido com intensidade de 100 mW/cm^2 do segundo laser de excitação. No espectro de cima, com 50 W/cm^2 de intensidade, observa-se o pico de ressonância molecular. O gráfico menor dentro ilustra a região espectral onde as medidas foram tiradas. Extraída de (30).

Este pico foi interpretado como um resultado de colisão foto-iniciada, cujo processo é identificado na equação (2.5). Os autores mostraram que algumas características novas observadas em espectros de átomos de Rydberg podem ser devidas à colisão foto-iniciada. A comparação dos resultados experimentais com os potenciais calculados mostrou que tais colisões são perfeitamente condizentes com as curvas de potenciais construídas a partir a interações dipolo-dipolo, dipolo-quadrupolo, quadrupolo-quadrupolo, efeito Stark e estrutura fina. A Figura 2.4 mostra a boa concordância entre experimento e teoria.

Figura 2.4 – O pico de colisão devido às ressonâncias moleculares em 88D + 90D concorda com as curvas de potenciais calculadas em (2.4) como mostra a região dentro do círculo em vermelho. Figura extraída de (30).

2.4 Interação entre Átomos de Rydberg em Potenciais Repulsivos

Os experimentos apresentados até agora apenas tratavam o problema de interação entre átomos de Rydberg em potenciais atrativos. Com cálculo de potenciais envolvendo diagonalização do Hamiltoniano e interações de ordens maiores obtêm-se as curvas de interação e utilizando a teoria semi-clássica de Landau – Zener é possível calcular a taxa de transição de transferência de energia dos estados sofrendo colisão em potenciais atrativos. Quando as interações atômicas envolvem potenciais repulsivos, tal abordagem não é mais cabível, entretanto resultados experimentais (31-32) evidenciam transferência de energia envolvendo estados $nS + nS$ de Rb, que apresentam potenciais repulsivos, como calculado na referência (27).

Nascimento e colaboradores em (31) reportaram a observação de população atômica no estado de Rydberg $nP_{3/2}$ após a excitação do estado $nS_{1/2}$, onde $29 \leq n \leq 37$. Os átomos de Rydberg eram criados a partir de átomos de rubídio aprisionados em uma armadilha magneto-óptica excitados via dois fótons. O processo de excitação é dado por $5S_{1/2} \rightarrow 5SP_{3/2} \rightarrow nS_{1/2}$ e foi usado um laser pulsado em 480 nm com taxa de repetição de 20 Hz e

largura de linha de $0,05 \text{ cm}^{-1}$. Como foi constatada uma dependência quadrática da população em $nP_{3/2}$ com a densidade atômica $nS_{1/2}$, Figura 2.5, seria natural atribuir o processo de transferência de população às colisões binárias; entretanto é sabido que a interação entre átomos de Rydberg de Rb em $nS_{1/2}$ é repulsiva.

Figura 2.5 – População de $nP_{3/2}$ como função da densidade em $nS_{1/2}$ para $29 \leq n \leq 37$. No gráfico de dentro é mostrado para $n = 32$ separadamente. Os pontos são dados experimentais e a curva um ajusta polinomial, que mostra que a dependência é quadrática. Figura extraída de (31).

O que os autores mostraram neste trabalho pioneiro foi que o efeito Stark ac do laser de excitação combinado com as interações dipolo-dipolo podem afetar a excitação de átomos de Rydberg em determinados estados, fazendo com que população seja observada em outros estados. Como mostra a Figura 2.6, o estado $32\tilde{P} + 31\tilde{P}$ é menos energético que o estado $32\tilde{S} + 32\tilde{S}$ e a projeção de $32\tilde{P} + 31\tilde{P}$ em $32\tilde{S} + 32\tilde{S}$ é definida por $C(R) = \langle 32\tilde{S}_{1/2} + 32\tilde{S}_{1/2} | 32\tilde{P}_{3/2} + 31\tilde{P}_{3/2} \rangle$. Devido à forte interação dipolo-dipolo o valor de $C(R)$ é diferente de zero, logo a transição para $32\tilde{P} + 31\tilde{P}$ não é proibida.

Figura 2.6 – (a) Curvas de potenciais próximas ao estado $32\tilde{S} + 32\tilde{S}$ em 500 mV/cm de campo elétrico externo dc. O estado $32\tilde{P} + 31\tilde{P}$ é menos energético para todo R relevante. (b) $C(R) = \langle 32\tilde{S}_{1/2} + 32\tilde{S}_{1/2} | 32\tilde{P}_{3/2} + 31\tilde{P}_{3/2} \rangle$. Figura extraída de (31).

Porém, como os autores apontaram, só a mistura de estados não explica a observação de $32P_{3/2}$, uma vez que o estado $32\tilde{P} + 31\tilde{P}$ está dessintonizado da frequência de ressonância do laser de excitação usado. A ressonância é atingida devido ao deslocamento do nível intermediário $5P_{3/2} + 32\tilde{S}_{1/2}$ pelo efeito Stark ac do laser de excitação. Um modelo simples mostrou que o máximo deslocamento é de aproximadamente ± 15 GHz. Ou seja, o efeito Autler-Townes (33) coloca o segundo fóton em ressonância com a transição $5P_{3/2} + 32\tilde{S}_{1/2} \rightarrow 32\tilde{P}_{3/2} + 31\tilde{P}_{3/2}$ e população em P é observada. Na verdade, o processo estudado por Nascimento e colaboradores não é um processo de transferência populacional, mas sim uma excitação direta de estados $nP_{3/2}$.

2.5 Influência do Campo de Ionização no Potencial de Interação entre Átomos de Rydberg

A técnica utilizada amplamente por diversos grupos de pesquisa, inclusive o nosso, para detectar átomos de Rydberg faz uso de um pulso de campo elétrico que deforma o potencial coulombiano atômico e ioniza os átomos. De maneira 100% seletiva, os elétrons desprendidos pelo pulso de campo ionizante atingem o detector. Abordamos em mais detalhes tal técnica no capítulo 3.

A aplicação deste pulso de campo de ionizante na detecção de átomos de Rydberg foi considerada durante vários anos como sendo um processo atômico isolado, onde o pulso elétrico simplesmente projeta os átomos em seus estados atômicos. Porém, Jianing Han e Thomas Gallagher em (20) observaram que esta premissa, apesar de ser quase certamente válida em experimentos a temperatura ambiente, onde as interações atômicas são transientes, não é necessariamente válida em experimentos envolvendo átomos frios. Em amostras frias, as interações atômicas são estáticas e os átomos estão sempre interagindo, o que devido à interação dipolar pode levar a uma influência maior ou menor do pulso de campo ionizante no processo de interação e transferência de população entre átomos de Rydberg.

Han e Gallagher reportaram que no processo colisional $nD + nD \rightarrow (n+2)P + (n-2)F$, para $41 \leq n \leq 46$, o processo de transferência populacional é mais intenso quando o pulso de campo ionizante utilizado apresenta uma subida lenta, de aproximadamente $6 \frac{V}{cm \mu s}$. A partir de átomos de rubídio aprisionados em uma armadilha magneto óptica, estados nD de Rydberg eram excitados via dois fótons com um laser pulsado de corante de taxa de repetição de 20Hz e pulso de 10 ns. O processo de detecção consistia em aplicar dois tipos de pulsos de campo ionizante, um lento e outro rápido, 80 ns após a detecção e analisar a fração $(n+2)P/nD$ para estes dois pulsos. A Figura 2.7 mostra o resultado publicado em (20), onde a fração $(n+2)P/nD$ é maior quando utilizado um pulso lento na detecção.

Figura 2.7 – Fração $(n+2)P/nD$ detectada em função do número quântico n . Em vermelho foi aplicado um pulso lento de aproximadamente $6 \frac{V}{cm \mu s}$ na detecção e em preto foi aplicado um pulso rápido de aproximadamente $400 \frac{V}{cm \mu s}$. Figura extraída de (20).

Como argumentaram os autores, o pico assimétrico produzido pelo pulso lento é resultado dos átomos, inicialmente excitados em $nD + nD$, passando pelo cruzamento evitado com o estado $(n+2)P + (n-2)F$ em uma amostra com campo elétrico dc diferente de zero. Para $n > 43$, os cruzamentos evitados devido às interações dipolares aparecem em campos elétricos dc pequenos, já em $n < 43$ o mesmo não ocorre. Devemos lembrar que em $n = 43$, há a ressonância entre $nD + nD$ e $(n+2)P + (n-2)F$. A Figura 2.8 (a) ilustra as energias assintóticas, $R \rightarrow \infty$ destes estados de pares atômicos em função de número quântico n , ou seja, quando a separação internuclear é infinita. Sendo assim, a interação dipolo-dipolo levanta a degenerescência do cruzamento, levando a um cruzamento evitado, quando o pulso aplicado na detecção é rápido ele faz com que o movimento atômico seja diabático e os átomos seguem a caminho A da Figura 2.8 (b). Diferentemente, quando o pulso aplicado é lento, os átomos passam adiabaticamente pelo cruzamento evitado, seguindo o caminho B da Figura 2.8 (b).

Figura 2.8 – (a) Energia relativa de $nD + nD$, chamada de dd , e de $(n+2)P + (n-2)F$, chamada de pf . A linha tracejada é o cálculo para infinita separação internuclear e a curva sólida é para $R = 5 \mu m$ considerando apenas interação dipolo-dipolo. Em $n=43$ observa-se a ressonância. (b) Energia relativa em função do campo elétrico dc. Em vermelho tracejado é o cálculo para $R \rightarrow \infty$, a curva sólida em preto é para $R = 5,5 \mu m$. Os caminhos A e B, diabático e adiabático respectivamente, são mostrados em preto tracejados. Figura extraída de (20).

2.6 Armadilhas ópticas de dipolo

Com os avanços experimentais na área de resfriamento e aprisionamento de amostras atômicas por lasers, se tornou possível evoluir para amostras aprisionadas cada vez mais densas. Tal fato, somado à excitação de átomos de Rydberg nestas amostras densas, viabilizou o crescimento de pesquisas na área de computação quântica (8,10,34,35) e na área de eletrodinâmica quântica com cavidades ressonantes (36,37), uma vez que os átomos de Rydberg são excelentes candidatos para gerarem sistemas emaranhados e consequentemente o *qubit*, o bit quântico (38).

As chamadas armadilhas ópticas de dipolo são as responsáveis pelo aprisionamento de amostras atômicas com densidade de duas a três ordens de grandeza superior as amostras aprisionadas em armadilhas magneto-óptica. Essas armadilhas se baseiam na interação entre o momento de dipolo atômico e o campo elétrico do laser utilizado, que pode ser atrativa ou repulsiva, dependendo da frequência da radiação com relação à ressonância atômica mais próxima. Para um laser de potência P_0 e cintura $w(z)$ seu perfil de intensidade é gaussiano, dado pela equação (2.6) em coordenadas cilíndricas.

$$I(r, z) = \frac{2 P_0}{\pi w(z)} e^{-\left(\frac{2r^2}{w^2(z)}\right)} \quad (2.6)$$

Onde a cintura do feixe $w(z)$ é dada pela equação (2.7) e o comprimento de Rayleigh, que por definição é a distância que a cintura do feixe aumenta $\sqrt{2}$ quando comparada com seu valor no foco, w_0 , é definido na equação (2.8).

$$w(z) = w_0^2 \left[1 + \left(\frac{z}{z_r} \right)^2 \right] \quad (2.7)$$

$$z_r = \pi w_0^2 / \lambda \quad (2.8)$$

A interação do dipolo elétrico induzido pelo feixe com o próprio feixe também apresenta um comportamento gaussiano dado pela equação (2.9).

$$U(r, z) = -\frac{U_0}{1 + \left(\frac{z}{z_r} \right)^2} e^{-\left(\frac{2r^2}{w^2(z)}\right)} \quad (2.9)$$

onde $U_0 = \frac{\alpha(\omega)P_0}{\epsilon_0 c \pi w_0^2}$ é chamada de profundidade da armadilha. Os parâmetros $\alpha(\omega)$, ϵ_0 , c , λ e w_0 , são respectivamente a polarizabilidade atômica, a constante dielétrica do vácuo, a velocidade da luz, o comprimento de onda e a cintura do feixe no foco.

Existem ainda dois regimes importantes para as armadilhas ópticas de dipolo sintonizadas para o vermelho (potencial atrativo), ou seja $\alpha(\omega) > 0$, da ressonância atômica: o primeiro é conhecido como *far off resonance optical trap* (FORT) (39), e o outro é denominado *quasi-electrostatic trap* (QUEST) (40).

O FORT é normalmente produzido a partir de um feixe laser gaussiano focalizado sobre uma armadilha MOT numa cintura mínima de 10 a 100 μm , dessintonizado entre 10 e 100 nm para o vermelho de uma determinada transição atômica permitida por dipolo elétrico. Normalmente, os lasers utilizados para produzir FORTs apresentam potências da ordem de 0,5 a 10 W, capazes de produzir armadilhas com 0,01 a 1 mK de profundidade para os átomos alcalinos. Nestas armadilhas a taxa de espalhamentos de fótons é da ordem de 10^3 s^{-1} , que é bem pequena comparada àquelas observadas em armadilhas baseadas na pressão de radiação.

Em armadilhas QUEST, tipo que foi carregada neste trabalho de doutorado, a frequência do laser é tão dessintonizada da ressonância atômica que a polarizabilidade atômica $\alpha(\omega)$ se torna simplesmente a polarizabilidade estática, $\alpha(0)$. Nesta armadilha, os átomos aprisionados podem ser descritos como simples dipolos elétricos oscilando em fase com o campo de radiação aplicado, resultando em uma força atrativa que é mais forte na região onde o campo elétrico da radiação apresenta maior amplitude, ou seja, no foco. O potencial de aprisionamento pode ser considerado conservativo, pois a taxa de espalhamento de fótons do laser de aprisionamento é desprezível, da ordem de 1 fóton por hora, podendo ser ignorada de modo geral. Note que essa taxa de espalhamento é muito menor do que aquelas encontradas nos FORTs, mencionadas logo acima. Por outro lado, lasers de alta potência são necessários para que se consiga obter armadilhas suficientemente profundas e essa é a principal razão pela qual são utilizados lasers de CO_2 com potências típicas de 20 a 100 W na implementação das armadilhas ópticas de dipolo encontradas na literatura (41-42).

3 MONTAGEM E MÉTODOS EXPERIMENTAIS

Neste capítulo, apresentamos a montagem experimental bem como os métodos experimentais utilizados nos experimentos. Iniciamos pela descrição da câmara de aprisionamento e seu sistema de vácuo e, em seguida, descreveremos as armadilhas magneto-óptica e armadilha óptica de dipolo bem como suas montagens ópticas. Abordamos os sistemas de excitação e detecção dos átomos de Rydberg, além do sistema de referência EIT e o controle automatizado da aquisição de dados. Por fim, descrevemos o método utilizado para a calibração do campo residual presente em nossa armadilha.

3.1 Câmara de Aprisionamento de Ultra Alto Vácuo

Nossa câmara de aprisionamento atômico foi toda montada em aço inoxidável e é composta por um octógono com diversos acessos ópticos, além de estruturas tubulares que permitem a fixação das bombas de vácuos, permitindo assim uma pressão interna da ordem de 10^{-11} torr. A Figura 3.1 ilustra o sistema de vácuo da câmara de aprisionamento em detalhes.

Figura 3.1 – Foto do sistema de vácuo da câmara de aprisionamento.

Para atingirmos uma pressão desta ordem, utilizamos uma bomba turbo molecular, da fabricante Pfeiffer Vacuum, de vazão de 230 l/s, uma bomba iônica, da fabricante Varian, de capacidade de bombeamento de 55 l/s e uma bomba de sublimação de Titânio com 3 filamentos e capacidade total de bombeamento de 500 l/s.

Para atingirmos o regime de ultra alto vácuo, primeiramente aquecemos o sistema até uma temperatura de 250 °C e o bombeamos com a bomba turbo molecular. Este procedimento dura umas duas semanas, durante as quais removemos água e outros contaminantes orgânicos do interior da câmara. A pressão final neste estágio é de 10^{-7} torr. Em seguida, ligamos a bomba iônica que leva o sistema à uma pressão da ordem de 10^{-9} torr em alguns dias. Neste ponto, a válvula de selo metálico de 1-1/2", da fabricante MDC Vacuum, é fechada e o sistema fica isolado. O último estágio é atingido utilizando a bomba de sublimação de Titânio. O bombeamento é devido à propriedade do titânio de se combinar quimicamente com gases ativos (N_2 , H_2 , O_2 , H_2O , CO_2 e CO). Para manter uma superfície não saturada, o titânio é evaporado de modo a formar camadas finas ou filmes sucessivos. A vaporização do titânio é feita por aquecimento resistivo de filamentos de ligas com titânio no interior da câmara. Ao final de aproximadamente 3 semanas, a pressão final é da ordem de 10^{-11} torr.

Descrito o sistema de vácuo, apresentamos na Figura 3.2 uma foto esquemática da câmara de aprisionamento por fora com os acessos ópticos, as bobinas de campo magnético, tubo de vôo e detector MCP. No total, a câmara possui onze janelas de 2-3/4", das quais seis são utilizadas para a armadilha magneto óptica, duas feitas de seleneto de Zinco (ZnSe) para armadilha de dipolo, uma para o tubo de vôo e detector(MCP) ,uma para o detector de íons(Channeltron) e uma para a válvula de selo metálico. Uma destas janelas é conectada ao um tubo 4-way, sendo as outras três saídas restantes do tubo utilizadas para conexões elétricas presente no interior da câmara. As janelas de 1-1/3" estão a 34 graus do eixo z e são usadas para acesso dos feixes de excitação, o de 780 nm e o laser azul. O par de bobinas de campo magnético na direção z está na configuração anti-Helmoltz e gera um gradiente de 10 Gauss/cm. Três pares de bobinas de compensação na configuração Helmholtz, uma em cada direção, produzem um campo da ordem 1 Gauss que anula o campo magnético da bomba iônica e o campo magnético terrestre.

Figura 3.2 – Foto da câmara de aprisionamento com destaque para os feixes de aprisionamentos, bobina de campo magnético com eixo na direção z , janela de ZnSe e janela do feixe azul, tubo de vóo e detector MCP.

No interior da câmara foram colocados dois *dispensers* (fonte de átomos), um sal de Rubídio que libera vapor de Rb quando recebe uma corrente elétrica, além de um detector de íons do tipo Channeltron e um conjunto de três grades para o sistema de detecção, que será descrito em detalhes na seção 3.5. A Figura 3.3 ilustra o interior de nossa câmara de aprisionamento.

Figura 3.3 – Foto de dentro da cmara de aprisionamento com destaque para o detector de on (Channeltron), conjunto de grades de deteco, *dispenser*, lentes de ZnSe para armadilha de dipolo e tubo de vo.

3.2 Sistema ptico de Aprisionamento

Temos montadas em nosso laboratrio dois tipos de armadilhas bastante conhecidas na literatura. A primeira delas a armadilha magneto-ptica 3D (AMO), que usa uma combinao de seis feixes pticos de frequncia prxima a transio atmica com um gradiente de campo magntico. Tipicamente a regio de confinamento possui ~ 1 mm de raio e temperatura de ~ 150 μ K, uma descrio mais detalhada do funcionamento desta armadilha pode ser encontrada em (43-44).

O segundo tipo uma armadilha puramente ptica, chamada de armadilha ptica de dipolo (AOD). Nela, a amostra atmica confinada na regio focal de um feixe laser de CO₂ (100W) de frequncia muito distante da transio atmica. Sendo assim, a taxa de espalhamento e conseqentemente as perdas da armadilha so drasticamente reduzidas e a

densidade atômica aprisionada pode ser até duas ordens de grandeza superior à da AMO. Descrições completas de seu funcionamento podem ser encontradas em (5,45).

As transições atômicas do ^{85}Rb que estamos interessados neste trabalho estão representadas no diagrama de energia abaixo, Figura 3.4. Utilizaremos a linha D2 de transição para o aprisionamento magneto-óptico (seta vermelha), além de uma transição de rebombeio (seta laranja). O processo de aprisionamento torna-se cíclico quando utilizamos este feixe adicional chamado de feixe de rebombeio, isto se faz necessário devido à estrutura hiperfina do estado fundamental do ^{85}Rb . O feixe de aprisionamento realiza a transição $|5S_{\frac{1}{2}}, F=3\rangle \rightarrow |5P_{\frac{3}{2}}, F'=4\rangle$, porém como o estado $|5P_{\frac{3}{2}}, F'=3\rangle$ está a apenas 120 MHz de energia abaixo, existe uma probabilidade não nula dos átomos irem para este estado e decaírem para o estado hiperfino fundamental $|5S_{\frac{1}{2}}, F=2\rangle$. Este decaimento gera um canal de perda, pois o laser de aprisionamento não está mais em ressonância. Com o feixe de rebombeio levamos novamente os átomos para o estado $|5P_{\frac{3}{2}}, F'=3\rangle$ que conseqüentemente podem decair para o $|5S_{\frac{1}{2}}, F=3\rangle$, fechando assim o ciclo de aprisionamento.

Figura 3.4 – Diagrama de níveis do ^{85}Rb com as transições de aprisionamento e de rebombeio.

3.2.1 Armadilha Magneto- Óptica

Nossa montagem começa com um laser de diodo fabricado pela Tóptica, modelo DL-100, de 150 mW, como mostrado na Figura 3.5. Visto que este laser não dispõe de potência e frequências suficientes para o experimento, foi necessário um arranjo especial. Para a explicação ficar mais simplificada, dividiremos a Figura 3.5 em 3 blocos distintos, os quais serão explicadas em detalhes.

Figura 3.5 – Montagem óptica do laser de 780 nm utilizada nos experimento. Bloco 1: Absorção saturada, bloco 2: Amplificação óptica e bloco 3: Feixe de excitação de 780 nm.

No Bloco 1 temos a montagem da absorção saturada por polarização (46), que é a técnica que gera o sinal de referência para travarmos a frequência do laser de aprisionamento. Primeiramente, aproximadamente 7 mW de potência do feixe principal é desviado para o bloco 1 que tem seu diâmetro reduzido pela metade num telescópio de lentes $f = 100$ mm e $f = 50$ mm. Em seguida o feixe tem sua frequência deslocada – 136 MHz por uma dupla passagem no modulador acústico-óptico de 80 MHz, da fabricante IntraAction. Após isto, o feixe é novamente dividido em dois; uma parte segue para a gerar o sinal de referência e a outra para o bloco 3. O sinal de referência é gerado propagando um feixe com polarização circular por uma célula de vapor de Rb (feixe de bombeio) e contra propagando a este um

outro feixe com polarização linear (feixe de prova). Este feixe de prova é então dividido em um cubo polarizador e atinge dois fotodetectores. Subtraindo o sinal dos dois fotodetectores, é possível gerar um espectro de absorção dispersivo e travar nosso laser na frequência desejada. Tal travamento é feito de maneira muito eficiente (laser permanece travado por longos períodos de tempo) utilizando um sistema de *lock* digital, fabricado pela Tóptica, e conhecido comercialmente com Módulo Digilock 110. A Figura 3.6 ilustra o sinal dispersivo utilizado no travamento.

Figura 3.6 – Interface do Digilock110, o sinal dispersivo representa a transição de aprisionamento onde o laser foi travado.

No bloco 2 acontece a amplificação óptica do feixe de aprisionamento, além da geração das frequências de aprisionamento e de rebombeio para o experimento. Para conseguirmos carregar amostras mais densas que o experimento demanda, foi necessário amplificar a potência do laser DL-100. O amplificador óptico construído por nós é constituído de um diodo TA (tapered amplifier), da fabricante m2K em 780nm, na configuração MOPA (Master Oscillator Power Amplifier), Figura 3.7 (a). Nesta configuração, nosso laser DL-100 faz o papel de semente e é injetado dentro do diodo TA com aproximadamente 30 mW, uma lente cilíndrica na saída corrige o astigmatismo do feixe. As Figura 3.7 (b) e (c) ilustram nosso amplificador óptico.

Figura 3.7 – (a) Configuração MOPA. (b) Desenho da montagem do amplificador óptico. (c) Foto do amplificador operado na mesa óptica.

Depois de um alinhamento cuidadoso para obtermos a maior eficiência possível, caracterizamos a potência de saída como função da corrente no diodo TA. A Figura 3.8 mostra esta caracterização para a temperatura de operação atual, que é 19°C . A temperatura é medida por um termistor instalado em contato com o diodo TA e a troca de calor é feita via um peltier instalado em contato com uma base de cobre. O controle de temperatura e de corrente é feito usando um sistema PID comercial fabricado pela Thorlabs, modelo TED200C e LDC240C respectivamente. A corrente de operação foi de aproximadamente 1600 mA e a potência de saída foi de aproximadamente 600 mW.

Figura 3.8 – Caracterização da potência de saída do amplificador óptico em função da corrente aplicada no diodo TA.

Após o estágio de amplificação óptica o feixe faz dupla passagem em um outro modulador acústico-óptico de 80 MHz, da fabricante IntraAction, tendo sua frequência deslocada aproximadamente 15 MHz abaixo da linha de transição de aprisionamento, Figura 3.4. Em seguida, o feixe passa pelo modulador eletro-óptico de frequência 3,036 GHz, da fabricante New Focus, e a frequência de rebombeio é gerada. Por fim, o feixe é acoplado em uma fibra óptica com uma entrada e três saídas (x, y, e z da câmara de aprisionamento) possuindo aproximadamente 30 mW de potência cada uma.

No bloco 3 temos o feixe usado na excitação dos átomos de Rydberg, além do feixe que é usado no sistema de referência e travamento do laser de excitação azul em 480 nm. Os detalhes da sequência de excitação para níveis de Rydberg e características dos feixes utilizados serão discutidos na seção 3.3. É importante ressaltar que estes dois feixes estão em ressonância com a transição de aprisionamento. A dupla passagem do feixe de excitação no modulador acústico-óptico de 40MHz, da fabricante IntraAction, é feita escolhendo a ordem +1 na primeira passagem e a ordem -1 na segunda passagem. Desta maneira, o modulador é usado apenas para chavear o feixe (construção do pulso) que não tem sua frequência alterada.

3.2.1 Armadilha de Dipolo

A armadilha de dipolo, ou armadilha óptica, é carregada a partir da armadilha magneto-óptica, ou seja, os átomos foram previamente resfriados e confinados na região de campo magnético nulo da AMO como descrito na secção anterior. O laser usado no aprisionamento óptico foi o modelo GEM-100 de classe industrial, fabricado pela COHERENT com 110 W de potência em $10,6\ \mu\text{m}$. Diferentemente do laser de aprisionamento da AMO, que necessita de uma boa estabilidade e frequência bem sintonizada na transição atômica, o laser de CO_2 opera longe da transição atômica de interesse. Seu poder de aprisionamento está ligado ao seu intenso gradiente de campo elétrico que é obtido após focalização em $w = 40\ \mu\text{m}$ dentro da câmara, gerando um potencial atrativo e conservativo na região focal.

Um controle de potência deste laser é necessário, uma vez que o potencial de aprisionamento depende basicamente do intenso gradiente de campo elétrico no foco. Para esse controle utilizamos um modulador acusto-óptico (AOM) da *IntraAction Corp.* – Modelo AGM 406B1. A ordem zero de modulação era desviada para um anteparo resfriado a água e a primeira ordem tinha acesso a câmara através de janelas de seleneto de Zinco, ZnSe , e era focalizada no centro da câmara, região da AMO, por uma lente também de ZeSe de $f = 50,8\text{mm}$.

Um telescópio montado antes da janela serve para corrigirmos a divergência do feixe e é formado por duas lentes, a primeira convergente de $f_1 = +25\ \text{mm}$ e a segunda divergente de $f_2 = -63\ \text{mm}$. A Figura 3.9 ilustra a montagem óptica da armadilha de dipolo.

Figura 3.9 – Montagem óptica para o laser de CO_2 utilizado no carregamento da armadilha de dipolo.

Devido à alta potência que era dissipada pelo laser, necessitamos de um sistema de refrigeração e “*interlock*” que garanta segurança tanto no sistema do laser quanto em componentes que receberão sua radiação como, por exemplo, seu modulador de potência (AOM), que receberá sua potência máxima. Para isso, utilizamos dois Chillers, fabricados pela Thermo Neslab modelo M-33, que refrigera o sistema com uma mistura de 50/50 de água e etileno glicol, mantendo a temperatura em 19°C.

O processo de alinhamento da armadilha de dipolo foi feito com o auxílio de um feixe ressonante com a amostra aprisionada na AMO, usado como um guia. Quando o feixe guia atingia a amostra, ele a deformava por ser ressonante, então marcamos a sua posição na entrada e saída da câmara e alinhamos o laser de CO₂ nestas mesmas posições. A Figura 3.10 ilustra a deformação da amostra pelo feixe guia.

Figura 3.10 – (a) Amostra preservada na AMO, sem o feixe guia.
(b) Deformação da amostra pelo feixe guia.

Nossa armadilha de dipolo possui aproximadamente 4×10^7 átomos e uma densidade gaussiana de máximo próximo a $\rho_0 = 9 \times 10^{11}$ átomos/cm³. As medidas de número de átomos e cálculo de densidade foram feitas utilizando as técnicas de imagem de fluorescência e imagem de absorção, bastantes conhecidas na literatura. Uma descrição completa de tais técnicas pode ser encontrada em (47-48).

É importante mencionarmos aqui que todos os experimentos apresentados nesta tese foram realizados com a amostra aprisionada na armadilha magneto-óptica. A armadilha de dipolo de CO₂ está em pleno funcionamento e pronta para no futuro receber experimentos envolvendo átomos de Rydberg.

3.3 Sistema de Excitação para Níveis de Rydberg

A excitação para os níveis de Rydberg é feita via dois fótons, o primeiro deles em 780 nm e o segundo na região azul, próximo de 480 nm, Figura 3.11. A sequência experimental da excitação é feita desligando os feixes de aprisionamento e ligando no mesmo instante o feixe de excitação em 780 nm. Este controle preciso é feito via os moduladores acústico-ópticos, o mesmo pulso que desliga o AMO de aprisionamento liga o AMO de excitação. Tal pulso é obtido por um gerador de atraso, da fabricante Stanford Corp., que também é responsável pelo pulso que controla o feixe azul de excitação. O feixe de 780 nm possui cintura de 55 μm e intensidade de 1,61 mW/cm^2 . A Figura 3.12 mostra a sequência temporal de excitação para níveis de Rydberg, bem como a disposição espacial dos feixes envolvidos.

Figura 3.11 – Diagrama de níveis de excitação por dois fótons para o estado de Rydberg do ^{85}Rb .

Figura 3.12 – (a) Sequência temporal de excitação para níveis de Rydberg. (b) Disposição espacial do aprisionamento magneto-óptico. (c) Disposição espacial dos feixes para excitação via dois fótons.

Nos experimentos envolvendo estados de Rydberg $nD + nD$, a excitação foi realizada de duas formas distintas, na primeira foi utilizado um laser pulsado em 480 nm e na segunda um laser contínuo (cw) em 480 nm. Nos experimentos envolvendo os estados de Rydberg $nS + nS$ apenas a excitação com o laser cw foi realizada.

3.3.1 Excitação com Laser Azul Pulsado

O laser pulsado utilizado nos experimentos envolvendo estados $nD + nD$ foi um laser de corante banda larga, $\Delta\nu = 1500$ MHz, da fabricante Jaguar Continuum. O bombeio foi feito pelo terceiro harmônico de um laser Nd:YAG também da empresa Continuum. Cada pulso tem aproximadamente 1 mJ de energia e sua taxa de repetição é 20 Hz. O corante utilizado foi o Exciton Coumarin 480 e seu domínio de comprimento de onda é de 470-485 nm.

3.3.2 Excitação com Laser Azul Contínuo (cw) - Construção da Caverna

Para resolvermos a estrutura fina dos átomos de Rydberg, que para estados quânticos entre 37 a 43 é da ordem de centenas de MHz, foi necessário substituir nosso laser pulsado banda larga ($\Delta\nu = 1500$ MHz) por um laser contínuo (cw) de largura de linha de aproximadamente 2 MHz. Para isso, construímos uma caverna de geração de segundo harmônico (SHG, do inglês Second Harmonic Generation) em anel, do tipo Bow Tie, Figura 3.13.

Figura 3.13 – (a) Desenho da caverna Bow Tie. (b) Suporte para o cristal gerador de segundo harmônico.

A caverna foi bombeada por um laser cw da Tópica em 960 nm, modelo DL PRO 100, de 150 mW de potência e 1 MHz de largura de linha. Foi necessário utilizarmos um amplificador óptico do tipo MOPA, como o discutido na seção 3.2.1, uma vez que a geração de segundo harmônico, por ser um fenômeno não linear, depende da intensidade do feixe de bombeio. O feixe amplificado é acoplado à caverna em anel, cujo meio ativo de amplificação é um cristal de PPKTP (Periodically Poled Potassium Titanyl Phosphate $KTiOPO_4$), a caverna é estabilizada através de um sinal de erro gerado por uma montagem Hänsch-Couillaud (49). O sinal de erro alimenta um módulo PID110 da Tópica que estabiliza a caverna por meio de um PZT (Material cerâmico piezo elétrico) fixado a um dos espelhos planos da caverna. O cristal é termicamente estabilizado por um controlador de temperatura da Thorlabs TC200. O controle da temperatura leva ao casamento de fase (Phase matching)

do cristal onde a maior eficiência na geração do segundo harmônico é obtida, uma descrição mais completa da geração de segundo harmônico e do casamento de fase é encontrada em (3.12).

Por fim, o feixe azul de 480 nm é então dividido, 70 % do feixe é acoplado a uma fibra óptica e levada à câmara de aprisionamento e utilizada no experimento, e o restante é utilizado na espectroscopia de EIT (Electromagnetic Induced Transparency). O acoplamento do feixe azul com a fibra apresenta eficiência de $\sim 40\%$ o que resulta em 30 mW de potência do laser de excitação no experimento com intensidade de $381,97 \text{ W/cm}^2$ e cintura de $50 \mu\text{m}$. A Figura 3.14 mostra a montagem óptica do feixe azul cw.

Figura 3.14 – Montagem óptica do feixe azul cw de excitação.

A Figura 3.15 ilustra um sinal típico de varredura de frequência do laser azul, que era realizada aplicando uma rampa de tensão no PZT do laser semente de 960 nm. Os cinco estados são devido à quebra de degenerescência dos estados da estrutura fina do 37D, pois havia um campo elétrico dc de 2 V/cm . A nomenclatura adotada foi $|j, m_j\rangle$, onde j é o momento angular da estrutura fina e m_j sua projeção no eixo do campo elétrico.

Figura 3.15 – Espectro de varredura do laser azul cw ao redor do estado 37D com um campo elétrico dc de 2 V/cm.

3.4 Sistema de Referência para o Laser Azul – EIT

A EIT é um fenômeno não-linear já que necessita de um feixe de controle (também chamado de feixe de bombeio), de frequência ω_c , de alta intensidade que modifica as condições físicas do meio. O sinal é devido à “janela” de transparência induzida no feixe de prova, de frequência ω_p , através da sintonização do feixe de controle de alta intensidade. O fenômeno é descrito pela interferência destrutiva da amplitude de probabilidade de transição entre os estados em que o feixe de prova é sintonizado. O processo envolve três estados, o estado mais estável do sistema $|1\rangle$, em nosso caso o estado fundamental do ^{85}Rb $|5S_{\frac{1}{2}}, F = 3\rangle$, um estado intermediário $|2\rangle$, que é o estado $|5P_{\frac{3}{2}}, F' = 4\rangle$ do ^{85}Rb acoplado por transição dipolar permitida ao primeiro estado e um terceiro estado metaestável $|3\rangle$, cuja transição ao primeiro estado seja proibida. Os estados de Rydberg, nS e nD , são escolhidos como o terceiro estado metaestável para a espectroscopia de EIT. A Figura 3.16 ilustra a configuração de EIT utilizada, chamada de configuração escada.

Figura 3.16 – Esquema da configuração escada utilizada na EIT.

O feixe de prova estabilizado pela absorção saturada por polarização é desviado da óptica do sistema de aprisionamento (ver Figura 3.5) por um cubo polarizador e passa por um conjunto de lentes, de maneira que a cintura do feixe de prova no interior da célula de Rb é de $140 \pm 5 \mu\text{m}$, e possui $760 \pm 10 \text{ nW}$ de potência. O feixe de controle possui aproximadamente as mesmas dimensões espaciais do feixe de prova, e 24 mW de potência no modo contínuo. Fazendo-os serem contrapropagantes no interior da célula de vapor de Rb, temos que a frequência de Rabi do controle é muito maior que a frequência de Rabi do feixe de prova, sendo assim, a condição de interferência destrutiva é atingida.

Devido às baixas potências utilizadas nesta espectroscopia, tipicamente o sinal de EIT é da ordem de 2 mV e a relação sinal-ruído é 3:1. Sendo assim, necessitamos utilizar um amplificador do tipo lock-in que filtra e amplifica o sinal, deixando-o com uma relação sinal-ruído de 1000:1. A Figura 3.17 ilustra os seis picos de EIT do estado $|5P_{3/2}, F' = 4, 3, 2\rangle$ devido à estrutura hiperfina do estado $|5P_{3/2}, F' = 4, 3, 2\rangle$ e à estrutura fina do 37D .

Figura 3.17 – Varredura do sinal de EIT amplificado e filtrado pelo lock-in.

3.5 Sistema para Detecção de Átomos de Rydberg

Para detectar os átomos de Rydberg, usamos uma técnica sofisticada e sensível, conhecida como ionização por campo elétrico pulsado, a qual é de domínio do nosso grupo há vários anos (2). A técnica consiste em aplicar um alto campo em um tempo muito curto ($< 4 \mu\text{s}$). Como os átomos de Rydberg são muito sensíveis a campos externos, isto permitirá ionizá-los. Além disso, tal técnica permite identificar exatamente quais estados estão participando do processo colisional, pois estados diferentes ionizam em campos diferentes, chegando ao detector em tempos diferentes.

O detector usado é um Micro Channeltron Plate (MCP) acoplado com uma tela de fósforo, modelo BOS-18 da empresa Beam Imaging Solution, com dois estágios de amplificação (chevron), área ativa de 18mm e ganho máximo $> 10^7$. Nosso sistema conta com três grades metálicas de dimensão 10 X 70 mm e transmissão de 95%, separadas por 14 mm e 6 mm e um cilindro de 470 mm aterrado, chamado de Tubo de vôlei, a 3mm da terceira grade que leva ao MCP. Esse tubo foi projetado neste tamanho para ganho de resolução em imagens de átomos de Rydberg na armadilha de dipolo em experimentos futuros. A Figura 3.18 ilustra nosso sistema de detecção.

Figura 3.18 – (a) Sistema de detecção formado por três grades metálicas e o tubo de voo, cedido por Jorge D. M. Kondo. (b) Foto da disposição do detector MCP com tela de fósforo, BOS-18. (c) MCP utilizado.

Nosso sistema detecta tanto elétrons quanto íons, bastando apesar trocarmos a polaridade do pulso de campo ionizante (PFI, do inglês *Pulse Field Ionization*) aplicado na grade 1, fornecido por um gerador de pulso AVTECH modelo AVRH 3-OS-PN, com saída de 3KV. Na detecção de elétrons a grade 1 recebe um pulso negativo e na detecção de íons recebe um pulso invertido (positivo), assim a força elétrica leva as partículas carregadas para a direção do tubo de voo. A Figura 3.19 nos mostra o pulso de campo ionizante utilizado na detecção de elétrons. Na grade 2 aplicamos uma tensão V_2 para zerarmos a campo residual do sistema e na grade 3 aplicamos V_3 para maximizarmos o sinal de elétron ou a imagem de íons, uma vez que esta grade funciona com uma lente eletrostática.

Figura 3.19 – Pulso de campo ionizante aplicado na grade 1 para a detecção de elétrons.

3.6 Controle Analógico e Digital de Saídas Sincronizadas e Aquisição de Dados

Todo o controle das saídas analógicas para alimentar os moduladores acústico-ópticos, tensões na grade 2 e 3, modulador eletro-óptico e PZT do laser azul e saídas digitais foi feito via software LabView. O software se comunicava com placas da empresa National Instruments, modelos PCI 6229 e PCI 6221, para fornecer as saídas analógicas e digitais além de adquirir os dados em entradas analógicas.

Para a aquisição de imagens, utilizamos uma câmera controlada de resolução de 640 X 480 pixels, da empresa Matrix-Vision, modelo mvBlueFox, que recebia o trigger via LabView. A Figura 3.20 ilustra a interface do programa do LabView para controle analógico e digital das saídas em uma sequência temporal utilizada na armadilha de dipolo.

Figura 3.20

– Interface do programa para saídas digitais e analógicas. A cima estão as saídas digitais da PCI 6229 e abaixo estão as saídas analógicas das placas PCI 6229 e PCI 6221. Os dois blocos na parte inferior à esquerda são geradores de pulsos e geradores de rampa utilizados na sequência.

3.7 Calibração do Campo Elétrico dc Residual

Para entender os processos colisionais na presença de campo elétrico dc, precisamos conhecer exatamente o campo elétrico residual presente em nossa armadilha. Tal campo tem sua origem devido à diferença de potencial aplicada na grade 3, que funciona como lente eletrostática.

Para calibrarmos tal campo residual excitamos o estado de Rydberg $37D$ em função da tensão dc aplicada na grade 2, V_2 . Como nosso laser de excitação possui largura de linha estreita ($\sim 2\text{MHz}$) conseguimos resolver a estrutura fina do estado $37D$ que tem separação de 236 MHz a campo zero. Fazendo a varredura da tensão V_2 é possível construir o mapa Stark e determinarmos a tensão de V_2 que anula o campo elétrico residual, consequentemente é possível determinar tal campo. Com este procedimento determinamos que o campo elétrico residual é da ordem de $1,4\text{ V/cm}$ na direção perpendicular as grades metálica e apontado para fora do tubo de vôo. Na Figura 3.21 ilustramos o mapa Stark medido para o estado $37D$, e a partir da posição dos máximos construímos o gráfico da Figura 3.22 que mostra o deslocamento Stark de cada estado da estrutura fina em função do campo elétrico.

Figura 3.21 – Mapa Stark para o estado $37D$.

Figura 3.22 – Deslocamento Stark em função do campo elétrico. Os pontos foram obtidos a partir da posição dos máximos do mapa Stark (Figura 3.21) e as linhas são as curvas calculadas.

4 ESTUDO DE TRANSFERÊNCIA DE POPULAÇÃO A PARTIR DE EXCITAÇÃO PULSADA DOS ESTADOS $nD + nD$

Neste capítulo, vamos investigar como uma transferência não adiabática envolvendo multiníveis (canais) de átomos de Rydberg é afetada por um campo elétrico dc. Especificamente estudaremos o decaimento do par diatômico quase molecular $nD + nD$, para $29 \leq n \leq 41$, através da transferência de população para o estado $(n+2)P$ observada 100 ns após a incidência do laser pulsado de excitação.

A explicação de nossos resultados experimentais requer que sejam considerados o efeito Stark dc, interações multipolares e a estrutura atômica fina. A dinâmica que leva à transferência de população para estados $(n+2)P$ é complexa, pois as curvas de potencial dos estados $nD + nD$ possuem muitos cruzamentos evitados (tradução do termo inglês *avoided crossings*) que causam transições não adiabáticas. A estrutura do par atômico a longas distâncias ($R > 2.5 \mu m$) é dominada por interações dipolares. A curto alcance, onde muitas curvas se cruzam, existe uma estrutura complicada e as interações quadrupolares passam a ser importantes. Neste experimento, descobrimos que o decaimento do par $nD + nD$ leva à transferência de população para o par $(n+2)P + (n-2)l$, onde $l \geq 3$, e que a taxa de decaimento para este processo pode ser significativamente influenciada pelo campo externo elétrico dc na amostra.

Nós também medimos a evolução temporal inicial da população em $(n+2)P$, e em seguida a comparamos com as taxas de transição teóricas entre estados relevantes. A concordância entre teoria e experimento é muito boa, sugerindo que os dados experimentais possam ser interpretados dinamicamente como um sistema passando por uma transição não adiabática (50).

4.1 Transferência de População

A seqüência temporal utilizada neste experimento é ilustrada na Figura 4.1, o tempo entre excitação e detecção via PFI foi variado entre 100 ns a 8 μ s. O boxcar 1 é responsável pela soma e média do sinal de nD e o boxcar 2 é responsável pela soma e média do sinal de (n+2)P.

Figura 4.1 – Sequência temporal utilizada. O Boxcar integra e faz média do sinal de elétrons.

Na Figura 4.2 mostramos um típico sinal de elétrons resolvido no tempo dos estados 37D e 39P na presença de um campo elétrico dc de 2 V/cm. O tamanho do sinal observado de 39P após 100 ns de excitação do estado 37D + 37D, Δt , é aproximadamente 10% do sinal atômico de 37D. A população do estado 35 ℓ se encontra a direita do pico de 37D, não sendo muito bem resolvida. Este sinal é de 3 a 10 vezes maior do que o sinal encontrado em casos onde o efeito Stark AC promove transferência de população (31).

Figura 4.2 – Sinal de elétrons resolvido no tempo do estado 37D, 39P e 35ℓ em 2 V/cm. A transferência de população de 37D para 39P é aproximadamente 10%.

Com a utilização de dois boxcars, um para o sinal de nD e o outro para o sinal de $(n+2)P$, constatamos que a população experimentalmente observada $(n+2)P$ depende quadraticamente com a densidade atômica nD , ρ_{nD} , para $29 \leq n \leq 41$. A Figura 4.3 ilustra o caso de $n = 37$. Isto confirma que o processo de transferência de população envolve dois átomos no estado nD , ou seja, trata-se de um processo de colisão binária.

Figura 4.3 – População em 39P como função de ρ_{37D} . Os dados foram normalizados em ambos os eixos. Os símbolos são os dados experimentais e a linha é o ajuste teórico pela expressão ρ_{37D}^a , onde a é o parâmetro ajustado. O ajuste teórico forneceu $a = 1,9 \pm 0,1$.

A partir de dados como os apresentados nas Figura 4.2 e Figura 4.3 para $29 \leq n \leq 41$, calculamos a constante de taxa de colisão de dois corpos, K , em função dos estados quânticos n . Esta constante K é definida por:

$$\frac{dN_{(n+2)P}}{dt} = K \int \rho_{nD}^2 dV \quad (4.1)$$

onde $\frac{dN_{(n+2)P}}{dt}$ é a derivada da população em $(n+2)P$ com relação ao tempo, ρ_{nD} é a densidade da população em nD e V é o volume de excitação. Nós podemos obter K usando a densidade experimental, que é de aproximadamente $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$, e o volume de interação do laser de aproximadamente $8 \times 10^{-3} \text{ cm}^3$. A Figura 4.4 mostra os valores de K teóricos e experimentais como função do número quântico n para campos de 0,5 V/cm e de 2 V/cm. Note que há um fator 3 a 4 na diferença entre as taxas em 0,5 V/cm e 2 V/cm para $n = 37$.

Figura 4.4 – Constante de taxa de dois corpos , K , como função do estado quântico n para 0,5 V/cm (círculo branco) e para 2 V/cm (círculo preto). Os pontos são os dados experimentais e as linhas são os cálculos teóricos. Figura extraída de (51).

4.2 Cálculo do Potencial

Para explicar os resultados mostrados na Figura 4.4, contamos com a colaboração do grupo do professor Dr. James P. Shaffer, da Universidade de Oklahoma, que calculou as interações entre dois átomos de Rydberg próximo do estado $nD + nD$ assintótico como função da distância internuclear, R . O cálculo inclui interações dipolo-dipolo, dipolo-quadrupolo e quadrupolo-quadrupolo, bem como o efeito Stark dc e estrutura atômica fina. Tudo isso resulta em uma matriz do hamiltoniano da ordem de 100.000×100.000 que precisa ser diagonalizada. O esforço computacional para se obter os autovalores desta matriz exige um supercomputador que a Universidade de Oklahoma possui no seu Centro de Estudo de Tornados e que o professor Dr. Shaffer tem acesso. As Figura 4.5 (a) e (b) mostram as curvas de potencial do estado $37D + 37D$ e estados próximos para $M = 0$, onde M é a projeção do momento angular no eixo internuclear, para dois campos elétricos dc diferentes, 0,5 V/cm e 2 V/cm. O cálculo indica que os *avoided crossings* são predominantemente devido à interação dipolo-dipolo, porém a interação quadrupolar não pode ser ignorada. Por exemplo, a interação

dipolo-quadrupolo é inferior a 5% da interação dipolo-dipolo em $R \sim 2 \mu\text{m}$ para campo de 0,5 V/cm. Já a interação quadrupolo-quadrupolo é inferior a 0,01% da interação dipolar para o estado $37D + 37D$ a mesma distância internuclear R . A curto alcance, $R < 1,5 \mu\text{m}$ para $37D + 37D$, a abordagem do problema é mais complexa, uma vez que as interações quadrupolares neste domínio podem ser cruciais, como mostrado na Figura 4.6. A Figura 4.6 (a) mostra o cálculo de potencial para $37D + 37D$ considerando interações quadrupolares, enquanto a Figura 4.6 (b) ilustra o mesmo cálculo desconsiderando tais interações. Como podemos notar na Figura 4.6 (b) um cruzamento entre curvas de potencial que resulta em uma significativa transferência de população para o estado $39P$ simplesmente desapareceu devido à ausência das interações quadrupolares. Este particular exemplo demonstra que os cruzamentos a curto alcance podem apresentar uma dependência dramática com as interações quadrupolares.

Figura 4.5 — Curvas de potencial do estado $37D + 37D$ e estados próximos para $M = 0$. (a) Em campo elétrico dc de 2 V/cm. (b) Em campo elétrico dc de 0,5 V/cm.

Figura 4.6 – (a) Curva de potencial considerando interações quadrupolares e dipolares. (b) Curva de potencial considerando apenas interações dipolares. Ambas as curvas consideram um campo elétrico dc de 0,5 V/cm. O cruzamento em $R \sim 1 \mu\text{m}$ aparece apenas quando as interações quadrupolares são consideradas.

4.3 Constante de Taxa de Colisão – Modelo Semiclássico Landau-Zener

Nesta secção, discutimos o modelo teórico para a taxa de transferência de população do par $nD + nD$ para o estado atômico $(n+2)P$ usando o modelo semiclássico de Landau-Zener. A Figura 4.7 ilustra o mecanismo de transferência de população.

Figura 4.7 – (a) Excitação do par $nD + nD$. (b) Aproximação do cruzamento evitado. (c) Transferência de população para $(n+2)P + (n-2)F$.

O modelo de Landau-Zener nos fornece a probabilidade de transição entre níveis de energia quando temos um processo diabático, ou seja, neste caso específico os átomos possuem velocidade diferente de zero. Essa probabilidade depende basicamente da forma dos níveis de energia e da velocidade dos átomos. A Probabilidade de transição no modelo semiclássico é dada por:

$$P = e^{-2\pi\Gamma}(1 - e^{-2\pi\Gamma}) \quad (4.2)$$

$$\Gamma = \frac{\Delta\omega^2}{4\hbar \frac{d\omega}{dR} \frac{dR}{dt}} \quad (4.3)$$

onde $\Delta\omega$ é diferença de energia dos níveis em frequência, $\frac{d\omega}{dR}$ é a variação da energia em

função da distância internuclear (forma dos níveis) e $\frac{dR}{dt}$ é a velocidade dos átomos.

Os pares de potenciais exibem muitos *avoided crossings* entre diferentes estados. Em determinadas distâncias internucleares, R , onde existem os cruzamentos, o sistema pode realizar uma transição diabática e mudar de estado. A posição R destes cruzamentos evitados varia com o número quântico n . Por exemplo, para $n = 29$, o cruzamento mais afastado está em $R = 1,3 \mu\text{m}$, enquanto que para $n = 41$, o cruzamento mais afastado está em $R = 1,7 \mu\text{m}$. Os cruzamentos evitados para estados $nD + nD$ foram encontrados usando um algoritmo

computacional de busca, que localizava a posição R onde um cruzamento evitado ocorria entre duas curvas de potencial calculadas.

Todos os cálculos de probabilidade de transição diabática para cada cruzamento foram feitos utilizando a fórmula semi-clássica de Landau-Zener. A velocidade utilizada pelo modelo foi aproximada pelo cálculo da energia cinética do sistema no ponto de cruzamento, assumindo que a excitação ocorria próxima ao limite de dissociação. Tal suposição foi feita para simplificar o problema, uma vez que é consistente com a aproximação que a excitação ocorre onde o fator de Franck-Condon e a probabilidade de encontrar um vizinho próximo são maiores, ou seja, no limite de dissociação, onde o caráter eletrônico de $nD + nD$ é praticamente puro. Nós também assumimos que o sistema faz apenas uma transição dentro do modelo de Landau-Zener, porque os pontos de retorno internos de $nD + nD$ estão a curto alcance. Além disso, muitas das curvas cruzam com estados de maiores momentos angulares orbitais ($\vec{L}$) e não são acopladas com estados $(n+2)P$, além do atraso do PFI ser pequeno não possibilitando o movimento atômico até curtas distâncias. A curto alcance, pequenos R , é provável, pela análise das curvas de potencial, que Ionização Penning e outros mecanismos de decaimento levem a diferentes estados produtos.

Todos nossos resultados da transferência de população apresentados aqui, envolvendo $nD + nD$ com excitação pulsada, são completamente explicados pela aplicação do modelo de Landau-Zener no cálculo da probabilidade de transição de estados quase moleculares, $nD + nD$ e $(n+2)P + (n-2)\ell$, para $\ell \geq 3$.

O pico mostrado na Figura 4.4 para $n = 37$ é resultado da contribuição dos estados de maiores momento angulares, $39P + 35\ell$ (com $\ell \geq 3$), devido ao deslocamento Stark. Estes estados quase moleculares possuem $39P$ e o caráter Stark e são fortemente deslocados com o campo elétrico. Inclusive mais cruzamentos que levam à $39P$ aparecem com o aumento do campo elétrico (51).

É importante mencionar que os efeitos de PFI na transferência de população observados por Han J. e Gallagher T. F. em (20) podem ocorrer em nosso experimento. Como mostra a Figura 4.8, os autores verificaram que quando o PFI é ligado de modo rápido ele contribui para uma maior transferência de população.

Figura 4.8 – Figura extraída do trabalho de Han J. e Gallagher T. (20) que mostra a influência do PFI no processo de transferência populacional.

Entretanto, nós acreditamos que tais efeitos são mínimos no nosso caso. Para verificar isto, usamos um pulso de campo ionizante ilustrado na Figura 4.9 (a) para ionizar os átomos no estado 39P após a excitação de 37D. O pulso começa 100 ns depois do pulso laser e cresce linearmente até atingir 2 V/cm em um tempo τ , que foi variado de 40 ns a 4 μ s, ou seja, a taxa de campo elétrico ionizante foi variada de 0,5 a 50 V/ μ s. Após 6 μ s que o pulso laser foi aplicado, o campo elétrico alcança um valor alto suficiente para ionizar o estado 37D. A Figura 4.9 (b) mostra claramente que a população do estado 39P não depende de τ , ou seja, não depende a taxa do PFI.

Figura 4.9 – (a) Sequência temporal para variar o tempo de subida do PFI, onde τ é variável. (b) População de ^{39}P como função de τ . Claramente observamos que a população de ^{39}P não depende deste parâmetro.

4.4 Evolução Temporal - Discussão

Neste experimento estudamos a evolução temporal do estado produto $(n+2)\text{P}$. Para isto, foram realizadas medidas de população no estado $(n+2)\text{P}$ para diferentes tempos entre excitação e detecção, Δt da Figura 4.1. Medimos a evolução temporal do sinal de elétrons de $(n+2)\text{P}$ até 8 μs após a excitação de $n\text{D} + n\text{D}$, a Figura 4.10 ilustra a evolução temporal no caso $n = 29$.

Figura 4.10 – Evolução temporal do estado 31P até 8 μs.

É sabido que para entendermos o processo de evolução temporal não podemos deixar de abordar a capacidade que a radiação de corpo negro tem de promover transferência de população, especialmente entre baixos Δn , (2). Para determinarmos a contribuição da radiação de corpo negro no processo de transferência de população, medimos além da população em nD e em $(n+2)P$ a população em estados energeticamente acima de nD , os quais nomeamos N_{up} . Como estes estados somente podem ser excitados via radiação de corpo negro usamos estes dados para comparar com um modelo de equação de taxa, equação (4.3).

$$\frac{dN_{(n+2)P}}{dt} = -\frac{N_{(n+2)P}}{\tau} + \sum \gamma_i N_{EstadosD} - \sum \gamma_j N_{(n+2)P} \quad (4.3)$$

Neste modelo temos um conjunto de equações semelhantes a equação (4.3), uma para cada um dos estados. O primeiro termo é o decaimento espontâneo, os termos positivos são as contribuições dos estados acima e abaixo e os termos negativos são as perdas para os estados acima e abaixo. O coeficiente γ_i é a probabilidade de transição entre os dois níveis. Observe que só existem termos lineares com a população, uma vez que estamos interessados apenas na contribuição de corpo negro. Resolvendo esse conjunto de equações acopladas temos a

evolução temporal devido a transições de corpo negro. Tal simulação nos permitiu eliminar a contribuição de corpo negro do estado $(n+2)P$. A Figura 4.11 (a) ilustra os estados considerados no modelo e na Figura 4.11 (b) mostramos a população de ^{31}P em função do tempo. Também mostramos a população dos estados localizados (N_{up}) acima do estado ^{31}P , que foi medida por um terceiro boxcar. A linha tracejada é obtida de nosso modelo de equação de taxa, e apresenta uma boa concordância. Subtraindo a contribuição dos estados acima (N_{up}) foi possível obtermos a população no estado ^{31}P sem a contribuição da radiação de corpo negro ($N_{^{31}PB}$).

Figura 4.11 – (a) Esquema dos níveis atômico considerados no modelo. As setas indicam algumas transições que ocorrem a partir de $(n+1)D$ e a partir de $(n+4)P$. (b) Evolução temporal de populações em ^{31}P com radiação de corpo negro ($N_{^{31}P}$), sem radiação de corpo negro ($N_{^{31}PB}$), e dos estados acima do estado ^{31}P (N_{up}). A linha tracejada é obtida através do modelo de equação de taxa.

Como notamos em Figura 4.11 (b) o sinal de $(n+2)P$ devido às transições diabáticas crescem linearmente com o tempo. A taxa com que esta evolução temporal ocorre depende do número quântico n e do campo elétrico dc. Na Figura 4.12, apresentamos os resultados experimentais bem com a curva teórica da taxa de evolução do estado $(n+2)P$ em função no número quântico n para dois campos elétricos dc, 0,5 V/cm e 2 V/cm. As taxas teóricas mostradas foram obtidas calculando os elementos de matrizes de acoplamento do Hamiltoniano onde havia os cruzamentos e usando a Regra de Ouro de Fermi para obter as taxas.

A concordância entre as medidas experimentais e o cálculo teórica é consistente com nossa interpretação que os dados são resultados de um decaimento de um estado quase molecular $nD + nD$. É importante mencionar que o decaimento diabático é um processo muito geral que ocorre em quase todos os pares de potenciais atrativos, porém cada par de átomos de Rydberg apresenta suas particularidades no processo sendo diferente de um par para outro. Decaimentos diabáticos podem ser somados à ionização Penning, decaimento molecular de corpo negro, transferência de excitação e efeitos de muitos corpos como importantes considerações experimentais.

Figura 4.12 – Taxa de evolução temporal em função do número quântico n . Os quadrados negros são os pontos experimentais para um campo de 0,5 V/cm e os quadrados brancos são dados calculados para o mesmo campo. Os círculos negros são os pontos experimentais para um campo de 2 V/cm e os círculos branco são os dados calculados para o mesmo campo.

É válido interpretarmos o experimento de evolução temporal como um uma excitação do par de átomos em nD , um estado não estacionário, com subsequente evolução temporal. Como a largura de banda do laser de excitação é muito maior que a taxa de acoplamento com o estado $(n+2)P$, o pulso laser inicialmente excita um pacote de onda que tem caracteres de dois átomos nD , o que chamamos de ordem zero de estado. À medida que o tempo passa e o sistema é capaz de evoluir sob influência das multi-interações átomo-átomo, o pacote de onda $nD + nD$ se propaga e o produto $(n+2)P$ aparece em uma escala de tempo inversamente proporcional à taxa de transição diabática. Esta é a interpretação clássica para uma transição diabática no domínio do tempo, a exceção aqui é a escala de tempo é de microssegundos.

Devemos ressaltar que este é o primeiro experimento realizado onde o modelo teórico explica tanto qualitativamente quanto quantitativamente os dados experimentais. Apesar de o nosso modelo teórico ser semiclássico, não há parâmetros ajustáveis e a concordância com os dados experimentais é excelente. Nossos resultados apresentam interessantes implicações para o entendimento do processo de transferência de população em átomos de Rydberg frios. Está claro o fato que as taxas de decaimento podem ser manipuladas com o campo elétrico dc na

amostra e que possuem uma forte dependência com o número quântico n . Tais dependências são complexas, principalmente se envolver uma combinação de baixos e altos momentos angulares orbitais (l). Estados que possuem forte deslocamento Stark (alto l) podem levar a elaboração de caracteres multiníveis na interação do par atômico, sendo estes cruciais no aparecimento de cruzamento evitados, como foi demonstrado.

Entretanto, nós também demonstramos que é possível determinar com cálculos de primeiros princípios o comportamento desses estados quase moleculares e suas interações. Embora tenhamos usado um modelo simples, modelos dinâmicos mais sofisticados podem ser implementados quando necessário. Por exemplo, uma teoria quântica de espalhamento de multicanais poderia ser usada para calcular as probabilidades de transições do par de átomos de Rydberg e um tratamento mais exato do processo de excitação poderia ser aplicado.

Nós também constatamos que os experimentos com laser pulsado podem ser interpretados no formato de dependência temporal em gases de Rydberg ultrafrios se a largura de linha de excitação é maior que os termos de acoplamentos estado-estado.

5 TRANSFERÊNCIA DE POPULAÇÃO ENVOLVENDO $nD + nD$ COM EXCITAÇÃO CONTÍNUA

Neste capítulo, abordamos os experimentos realizados envolvendo os estados $nD + nD$ via excitação com laser contínuo. Estudamos o processo de transferência de população $nD + nD \rightarrow (n+2)P + (n-2)\ell$, onde $\ell \geq 3$, em função do número quântico n , para $37 \leq n \leq 45$. Nos resultados, mostramos claramente que esta transferência trata-se de um processo binário. Como a excitação é realizada com um laser contínuo de estreita largura de linha, aproximadamente 2 MHz, podemos estudar o processo de transferência de população para cada estado da estrutura fina dos átomos de Rydberg. Os resultados serão comparados aos obtidos com excitação pulsada.

Além do estudo de transferência de população em função do número quântico n , realizamos experimentos variando o tempo entre excitação e detecção dos átomos de Rydberg. Também realizamos um experimento para estudar como a população no estado $nD + nD$ e a população no estado $(n+2)P$ variam com o tempo de excitação. Por fim, investigamos a influência da estrutura fina do estado fundamental no processo de transferência de população para o estado $(n+2)P$.

5.1 Transferências de População em Função do Número Quântico n

Neste primeiro experimento, estudamos o processo de transferência em função do número quântico principal, n , para dois valores de campos elétricos estáticos externos constantes 0,5 V/cm e 2 V/cm. Para isso, fixamos a largura do pulso de excitação em 1,2 μ s e o tempo de atraso entre excitação e detecção em $\Delta t = 800$ ns. O boxcar 1 mede a população em nD e o boxcar 2 mede a população em $(n+2)P$. A Figura 5.1 representa a sequência temporal do experimento.

Figura 5.1 – Sequência temporal do experimento envolvendo $nD + nD$. O tempo de atraso entre excitação e detecção, Δt , foi fixado em 800 ns.

Tipicamente observamos um sinal de elétrons como mostramos na Figura 5.2, onde o pico maior representa população no estado excitado nD . Do lado esquerdo observamos um pico menor, referente à população transferida para o estado $(n+2)P$. Este sinal foi obtido em campo externo dc nulo.

Figura 5.2 — Sinal de elétrons para 43D para campo elétrico externo de nulo.

Como podemos notar, o pico de transferência de população, em $n = 43$, é da ordem do pico de população de nD . Tal fato já era esperado, pois a campo nulo, existe uma ressonância de Förster para $n = 43$, como já mostrado por Jianing Han e T. F. Gallagher em (20) e discutido no capítulo de Revisão da Literatura. A Figura 5.3 ilustra a diferença de energia, ΔE , entre o par nD e o estado $(n+2)P + (n-2)\ell$, podemos notar a ressonância, $\Delta E = 0$, para $n = 43$.

Figura 5.3 – Diferença de energia entre os estados $nD + nD$ e $(n+2)P_{1/2} + (n-2)F_{7/2}$. Em $n = 43$, notamos a ressonância Förster.

O processo de transferência de população $nD + nD \rightarrow (n+2)P + (n-2)\ell$, onde $\ell \geq 3$, claramente envolve dois corpos. Para testar isso, medimos a população no estado $(n+2)P$ em função da densidade atômica do estado nD (ρ_{nD}). Para variar ρ_{nD} optamos por variar a potência da frequência de rebombeio, como foi feito no caso pulsado. A Figura 5.4 ilustra a dependência da população em $(n+2)P$ em função de ρ_{nD} , no caso específico de $n = 43$.

Figura 5.4 – Dependência da população em 45P em função da densidade. A curva vermelha é o ajuste teórico com a seguinte expressão $y = x^A$.

Na Figura 5.4 a população medida em 45P é resultado da transferência de população do estado 43D com momento angular $j = 3/2$. O ajuste teórico polinomial feito pela expressão $y = x^A$ mostrou que a dependência da população transferida, $(n+2)P$, com a densidade, ρ_{nD} , é quadrática. O valor do parâmetro de ajuste A foi $2,1 \pm 0,2$ para o 45P, provando assim que o processo colisional responsável pela transferência de população é um processo que envolve dois átomos de Rydberg, ou seja, um processo binário.

Como discutimos no capítulo anterior, o campo elétrico dc na amostra assume um papel muito importante no processo de transferência. Vimos que as curvas de potenciais moleculares ao redor de $nD + nD$ são fortemente modificadas dependendo do campo elétrico dc na amostra, principalmente a curto alcance, o que altera a transferência de população para o estado $(n+2)P$. A Figura 5. 5 ilustra o sinal de varredura do estado 45D para três campos distintos. A partir de varreduras do sinal de nD e $(n+2)P$ calculamos a constante de taxa de colisão de dois corpos, K (definida na equação (4.1), em função dos estados quânticos n para dois campos diferentes, 0,5 V/cm e 2 V/cm. Na Figura 5.6 mostramos os resultados medidos para 0,5 V/cm além do gráfico teórico da probabilidade de Landau–Zener. O cálculo teórico foi realizado pelo grupo do Prof. Dr. Shaffer, da mesma maneira mencionada no capítulo

anterior. Devemos salientar que para o caso de 0,5 V/cm, não somos capazes de distinguir os diferentes m_j .

Figura 5.5 – Sinal de varredura do estado 45D para três campos distintos, 0 V/cm (vermelho), 0,5 V/cm (azul) e 2 V/cm (verde). O sinal de referência de EIT é o sinal em preto. Foi usada a representação $|j, m_j\rangle$ para o campo de 2 V/cm e $|j\rangle$ para os demais, onde j é o momento angular e m_j sua projeção na direção do campo elétrico.

Figura 5.6 – (a) Constante de taxa de colisão, K , em função do número quântico n medida em campo de 0,5 V/cm. Em preto o momento angular do nD é $j = 3/2$ e em vermelho é $j = 5/2$. (b) Probabilidade de Landau–Zener calculada a partir das curvas de potenciais. Novamente em preto é para o momento angular $j = 3/2$ e em vermelho é para $j = 5/2$.

Comparando (a) com (b) na Figura 5.6 podemos afirmar que até $n = 41$ o modelo teórico concorda bem com o experimento, em ambos observamos uma curva decrescente, tanto para $j = 3/2$ quanto para $j = 5/2$. Tal comportamento é completamente entendido se analisarmos a dinâmica do modelo semiclássico de Landau–Zener mais cuidadosamente. Nas equações (4.2 e 4.3) do capítulo anterior vemos que a probabilidade de Landau–Zener depende basicamente da diferença de energia no cruzamento evitado e da velocidade na região do cruzamento. Sabemos que em átomos de Rydberg a diferença de energia entre estados adjacentes apresenta dependência de $1/n^3$, então é razoável afirmar que a diferença de energia no cruzamento evitado, $\Delta\omega$, é um valor proporcional a $1/n^3$. Com relação à velocidade, podemos estimá-la como proporcional a $\sqrt{\Delta\omega} \propto 1/n^{3/2}$. Sendo assim a probabilidade de Landau–Zener assumiria o valor de $P = e^{-C(1/n^{3/2})} (1 - e^{-C(1/n^{3/2})})$, onde C é uma constante positiva. Nota-se que a probabilidade decresce à medida que n cresce.

Para $n = 42$ e $n = 43$, que são os últimos estados que temos a probabilidade de Landau–Zener calculada o resultado experimental se mostrou bastante diferente da teoria. Tal fato mostra que quando nos aproximamos da ressonância de Förster, em $n = 43$, a mistura de níveis de energia gerada pelas interações multipolares é tão intensa que o modelo já não descreve bem a realidade.

Vamos agora analisar os resultados da constante de taxa de colisão em função do número quântico n para 2 V/cm, nesta região de campo é possível distinguirmos os m_j . A Figura 5.7 (a), representa os dados obtidos experimentalmente e a Figura 5.7 (b) o cálculo teórico da probabilidade de Landau–Zener também calculada pelo grupo do Prof. Dr. Shaffer.

Figura 5.7 – (a) Constante de taxa de colisão, K , em função do número quântico n medida em campo de 2 V/cm. (b) Probabilidade de Landau–Zener calculada a partir das curvas de potenciais. Cada cor distingue um estado diferente.

Primeiro fato que notamos é que o comportamento de K em função de n para 2 V/cm é bastante diferente quando comparado ao K em campo de 0,5 V/cm, o que evidencia que o campo elétrico altera a dinâmica no processo de transferência de população. Isto já foi observado no caso de excitação pulsada, vimos no capítulo anterior que a presença de campo elétrico de muda as curvas de potenciais, o que altera o processo de transferência de população.

Comparando (a) e (b), experimento com teoria, vemos que para o caso $j = 3/2$, a concordância é razoável até $n = 41$, fato já observado no caso de campo 0,5 V/cm. Próximo à ressonância de Förster o modelo semiclássico não descreve bem o experimento. Já para o caso $j = 5/2$, onde temos três estados distintos, o modelo semiclássico descreve razoavelmente bem o experimento, apresentando um pequeno pico em $n = 38$ e um outro na região de próxima de $n = 42$.

Devemos ressaltar que as discrepâncias da teoria podem ser devidas também a problemas na identificação dos cruzamentos evitados. Devido ao fato das curvas de potenciais

serem verdadeiros “espaguetes”, a identificação dos cruzamentos evitados se dá através de um algoritmo desenvolvido pelo grupo de Oklahoma. Pode ser que quando a diferença de energia entre os estados é grande, o algoritmo funcione bem. Entretanto, quando nos aproximamos da ressonância de Förster, este mesmo não mais funciona. Esta possibilidade está sendo investigada.

5.2 Evolução Temporal da Transferência de População

Neste experimento, seguimos a mesma sequência temporal mostrada na Figura 5.1, porém variamos o tempo de atraso entre excitação e detecção e fixamos o tempo de excitação em $1,2 \mu\text{s}$. Desta maneira medimos a evolução temporal da fração $(n+2)P/nD$ para $37 \leq n \leq 45$ e para dois campos distintos: $0,5 \text{ V/cm}$ e 2 V/cm até $8 \mu\text{s}$. A Figura 5.8 mostra a evolução temporal para $n = 38$.

Figura 5.8 – Evolução temporal do fração N_{40P}/N_{38D} até 8 μs . (a) Campo elétrico de 0,5 V/cm. (b) Campo elétrico de 2 V/cm.

O comportamento linear da evolução temporal da fração N_{40P}/N_{38D} mostrado na Figura 5.8 se repete no domínio $37 \leq n \leq 45$. A taxa desta evolução temporal, inclinação, depende do estado quântico e do campo elétrico externo. Sendo assim, calculamos a taxa de evolução temporal através de um ajuste linear dos dados experimentais até 4 μs em função de n para os dois campos que é mostrada na Figura 5.9. A contribuição de corpo negro foi desconsiderada neste cálculo, pois através do modelo de equação de taxa, discutido no capítulo 4, constatamos que até 4 μs sua contribuição para o estado $(n+2)P$ é menor que 1,5% no domínio de $37 \leq n \leq 45$. Tal resultado de evolução já foi observado no caso da excitação pulsada, capítulo 4, e como foi discutido lá podemos interpretá-lo como um excitação do par nD com subsequente evolução temporal. Com o passar do tempo o sistema evolui sob influência das multi-interações átomo-átomo e a função de onda do estado $nD + nD$ se

propaga, em seguida o produto $(n+2)P$ aparece em uma escala de tempo inversamente proporcional à taxa de transição diabática de transferência.

Figura 5.9 – Inclinação, ou taxa, da evolução temporal em função do número quântico n . (a) Campo elétrico de 0,5 V/cm. (b) Campo elétrico dc de 2 V/cm.

Novamente observamos na comparação entre as Figura 5.9 (a) e (b) que a presença de um campo elétrico externo dc altera consideravelmente a taxa de evolução temporal da fração $(n+2)P/nD$. Como já mencionamos no capítulo 4, isto acontece porque o campo elétrico externo dc modifica as curvas de potenciais de interação, o que resulta em uma taxa de transferência diabática diferente, e consequentemente numa evolução temporal diferente para

cada campo. O cálculo teórico destas inclinações com a estrutura fina resolvida está sendo realizado pelo grupo do professor Dr. Shaffer e em breve poderemos comparar com nossos resultados experimentais.

5.3 Dependência da População em nD e em nP com o Tempo de Excitação

Neste experimento utilizamos a mesma sequência temporal mostrada na Figura 5.1. Fixamos o atraso entre excitação e detecção, Δt , em 800 ns e variamos a largura do pulso azul do laser cw, utilizando o modulador acústico-óptico. Iniciamos com um pulso de largura de 200 ns e em passos de 200 ns fomos até a largura de 2 μ s. Medimos a população em $(n+2)P$ e em nD , para $37 \leq n \leq 45$ em dois campos elétricos diferentes, 0,5 V/cm e 2 V/cm. A Figura 5.10 ilustra a fração de população $39P/37D$ em função do tempo de excitação para os campos de 0,5 V/cm e 2 V/cm.

Figura 5.10 — (a) Fração da população $39P/37D$ em campo de 0,5 V/cm. (b) Fração da população $39P/37D$ em campo de 2 V/cm. Os pontos são dados experimentais e a linha verde é a curva teórica do modelo de equação de taxa envolvendo apenas radiação de corpo negro.

Podemos observar que tanto a população produto, N_{39P} , quanto a população excitada, N_{37P} , apresenta um comportamento crescente quando aumentamos a largura do pulso de excitação. A taxa com que ocorre esta variação inicial depende do estado quase molecular envolvido no processo colisional. Para provar que tal crescimento não é transferência de população via radiação de corpo negro, fizemos um modelo de equação de taxa considerando as taxa de bombeio do estado fundamental para o estado de Rydberg, emissão induzida e emissão espontânea, sendo todos termos lineares. O modelo é constituído de quatro níveis, sendo eles: 1) estado fundamental $5S_{1/2}$, 2) primeiro estado excitado $5P_{3/2}$, 3) estado de Rydberg nD e 4) estado de Rydberg $(n+2)P$. A densidade da amostra foi considerada gaussiana com pico de 1×10^{10} átomos/cm³. A Figura 5.11 ilustra os níveis considerados bem

como as equações utilizadas. As curvas em verde da Figura 5.10 (a) e (b) são resultados das equações de taxa. Como podemos notar seus valores são inferiores aos obtidos experimentalmente, logo podemos afirmar que o processo de transferência de população não é devido à radiação de corpo negro. Acreditamos que a transferência de população advém de colisões binárias e que a largura do pulso de excitação altera as curvas de potenciais. Tais cálculos estão sendo realizados pelo nosso colaborador, Prof. Dr. Shaffer, e em breve teremos um melhor entendimento da dinâmica de transferência de população em função da largura do pulso de excitação.

Figura 5.11 – Modelo de quatro níveis utilizado, onde os termos W_1 e W_2 são termos de bombeio e os γ são termos de decaimento (induzido e espontâneo).

5.4 Influência da Estrutura Hiperfina do Estado Fundamental na População $(n+2)P$

O experimento proposto aqui é relativamente simples, o que foi feito basicamente foi variarmos a posição temporal do pulso de excitação azul com relação ao feixe de excitação em 780 nm, ΔT , e fixarmos o atraso entre excitação e detecção, Δt , em 800 ns. Como mostra a Figura 5.12, fixamos em aproximadamente 85 μs o tempo que nosso feixe de excitação em 780 nm ficava ligado e iniciamos a excitação com o pulso de azul cw, de largura de 1 μs , 900 ns antes de do feixe em 780 nm, $\Delta T = -900$ ns. Ou seja, apenas 100 ns do pulso azul

contribuíam para excitação, Figura 5.12 (a). É importante mencionar que não haviam outras frequências envolvidas no processo. Em seguida, em passos iniciais de 100 ns deslocávamos o pulso azul para a região de excitação, aumentando até 1 μ s o tempo de excitação e $\Delta T = 0$, Figura 5.12 (b). A partir deste ponto, o tempo de excitação era fixado pela largura do pulso azul de 1 μ s e o seu deslocamento temporal, ΔT , apenas aumentava seu atraso com relação ao feixe de excitação de 780 nm, Figura 5.12 (c).

Figura 5.12 – Sequência temporal do experimento, $\Delta t = 800$ ns. (a) Inicialmente o tempo de excitação era de 100ns. (b) Tempo de excitação de 1 µs e $\Delta T = 0$. (c) Variamos ΔT até 82 µs.

Desta maneira podemos testar se houve excitação direta do estado $45P$ a partir do estado hiperfino fundamental $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$, pois a medida que aumentamos ΔT , esperamos um acúmulo de população no estado $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$ já que não há rebombeio no feixe de excitação em 780 nm. Consequentemente o laser de aprisionamento fica dessintonizado em

aproximadamente 3 GHz (separação hiperfina do estado fundamental do Rb). Logo a soma dos dois fótons (780 nm e 480 nm) de excitação fica fora de ressonância com o estado $43D + 43D$. Porém, a curta distância internuclear a soma dos dois fótons pode entrar em ressonância com o estado $45P + 41\ell$, $\ell \geq 3$, ou seja, há a possibilidade de excitação direta do estado $45P$. A Figura 5.13 ilustra esta situação de excitação direta de $45P$ e na Figura 5.15 mostramos a razão da população de $45P$ com a população em $43P$ em função de ΔT .

Figura 5.13

– Esquema de excitação direta do estado $45P$ a partir do estado hiperfino fundamental $|5P_{3/2}, F=2\rangle$. Os valores de ΔE podem ser encontrados na Figura 5.3.

Para descobrirmos em quanto tempo o sistema decai para o estado hiperfino fundamental $|5S_{1/2}, F=2\rangle$ escrevemos um modelo com as equações de taxa dos estados envolvidos no processo. A equação (5.1) descreve a população em $|5S_{1/2}, F=3\rangle$, equação (5.2) descreve a população em $|5S_{1/2}, F=2\rangle$, a equação (5.3) descreve a população em $|5P_{3/2}, F'=3\rangle$ e a equação (5.4) descreve a população em $|5P_{3/2}, F'=4\rangle$. A taxa de bombeio W é dada pela equação (5.5).

$$\frac{dN_3}{dt} = -(W + W')N_3 + \frac{7}{12}\Gamma N_{3'} + \Gamma N_{4'} \quad (5.1)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = +\frac{5}{12}\Gamma N_{3'} \quad (5.2)$$

$$\frac{dN_{3'}}{dt} = +W'N_3 - \Gamma N_{3'} \quad (5.3)$$

$$\frac{dN_{4'}}{dt} = +WN_3 - \Gamma N_{4'} \quad (5.4)$$

$$W = \frac{1}{2\tau} \frac{\left(\frac{I}{I_{sat}}\right)}{1 + 4\left(\frac{\Delta}{\Gamma}\right)^2 + \left(\frac{I}{I_{sat}}\right)} \quad (5.5)$$

Onde τ o tempo de vida do estado excitado, I a intensidade do laser, I_{sat} a intensidade de saturação da transição, Δ a dessintonia do laser com a transição e Γ a largura de linha da transição. A Figura 5.14 (a) ilustra o modelo e a Figura 5.14 (b) mostra sua solução para as populações nos dois estados hiperfinos.

Figura 5.14 - (a) Modelo para escrever as equações de taxa dos estados hiperfinos do ^{85}Rb . (b) Solução do modelo, em 2 μs praticamente toda a população já está em $|5S_{1/2}, F=2\rangle$.

Como podemos notar na Figura 5.14 (b) após 2 μs praticamente todos os átomos já decaíram para o estado hiperfino fundamental $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$. Como verificamos na Figura 5.15 abaixo existe uma razão considerável de população em 45P pela população em 43P para dezenas de microssegundos após do início do feixe de excitação de 780 nm. Um ajuste de decaimento exponencial simples ($N_{45P}/N_{43D} = y_0 + Ae^{-\Delta T/\tau}$) nos fornece um tempo de decaimento, τ , de aproximadamente 40 μs tanto para $j = 3/2$ quanto para $j = 5/2$.

Ou seja, os valores de τ da ordem de dezenas de microssegundos nas medidas experimentais são muito superiores ao tempo que a população decai do primeiro estado excitado, $|5P_{3/2}\rangle$, para o estado hiperfino fundamental, $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$. Logo, podemos afirmar que ocorre excitação direta do estado 45P a partir do estado hiperfino fundamental. Este resultado é extremamente importante, pois não encontramos na literatura modelos ou experimentos que considerem a influência do estado fundamental hiperfino em processos de transferência de população.

Figura 5.15 - Razão da população em 45P com a população em 43D para os dois estados de momento angular $j = 3/2$ (em azul) e $j = 5/2$ (em vermelho) em função do atraso com relação ao feixe de excitação de 780 nm, ΔT . O Campo elétrico na amostra era de 0,5 V/cm.

Sabemos que o modelo de expansão térmica livre, ver (52), não descreve o decaimento observado, pois para uma amostra em aproximadamente 200 μK a expansão térmica ocorre na escala de dezenas de milissegundos e o que observamos foi um decaimento na escala de dezenas de microssegundo. Para o decaimento observado ser devido a expansão térmica os átomos deveriam estar a uma temperatura de 300 K, ou seja, seis ordens de grandeza maior que a temperatura da amostra ultra fria.

Sendo assim, elaboramos um modelo bastante simples envolvendo a troca de momentum linear entre o átomo e fóton da radiação de excitação. Imaginamos um átomo inicialmente em repouso na armadilha, o qual começa a absorver fótons e momentum. Sem dúvida, o deslocamento Doppler devido à absorção de um fóton, modificará a probabilidade de absorção do fóton seguinte. Mas para isso, primeiramente obtivemos a largura de linha efetiva da transição de dois fótons através de varredura do estado 43D. A Figura 5.16 ilustra a varredura utilizada bem como ajuste por uma lorentziana para obter uma largura efetiva, Γ , de aproximadamente 16 MHz.

Figura 5.16 - Em preto temos a varredura do estado 43S e em vermelho o ajuste teórico pela lorentziana $y = y_0 + \frac{2A}{\pi} \frac{\Gamma}{4(x-x_c)^2 + \Gamma^2}$, que nos forneceu $\Gamma \cong 16$ MHz como largura efetiva.

Vamos considerar que a probabilidade de absorção de $(n+1)$ fóton, após a absorção de n fótons, é dada por:

$$P_{n+1} = \frac{\Gamma^2}{4(k n \Delta v)^2 + \Gamma^2} \quad (5.6)$$

Onde o termo $(k n \Delta v)$ representa o deslocamento Doppler de frequência, sendo k o número de onda, n é o número de fótons e Δv é a velocidade de recuo do átomo de Rb devido à um fóton (0,6 cm/s). Vale salientar que embora a emissão espontânea seja aleatória, a absorção ocorre apenas na direção do feixe de excitação. É importante ressaltar também que embora a excitação envolva dois fótons distintos, estamos considerando apenas o fóton em 780 nm, visto que a taxa de transição de 5P para nD é baixa. A probabilidade foi escrita para ser igual à unidade quando o átomo se encontrar no estado fundamental sem absorção de nenhum fóton. Se a probabilidade de absorção decai conforme o átomo absorve mais fótons, por causa do efeito Doppler, é natural esperar que o tempo entre duas absorções consecutivas aumente. Assim podemos dizer que o tempo entre duas absorções é dado por τ/P_n , onde τ é o tempo de vida do estado. Variando n de 1 até 2000 fótons calculamos P_n e τ/P_n , em função de n . Em seguida, graficamos P_n por $\sum_{i=1}^n \tau/P_i$ que representa o tempo total quando n fótons são absorvidos. Como mostra a curva em preto da Figura 5.17, com o aumento de ΔT , mais fótons são absorvidos e por deslocamento Doppler de frequência os átomos saem da região da largura de linha de transição, o que gera uma perda em seu número na escala de dezenas de microssegundos. Esse modelo bastante simples consegue descrever razoavelmente bem o experimento, um modelo mais elaborado envolveria fazer estatística de muito corpos e usar o método de Monte Carlo, mas não é nosso objetivo aqui.

Figura 5.17 - Comparação entre a razão da população em 45P com a população em 43D para os dois estados de momento angular $j = 3/2$ (em azul) e $j = 5/2$ (em vermelho) e o modelo teórico (curva preta) de probabilidade de absorção para 2000 fótons.

6 TRANSFERÊNCIA DE POPULAÇÃO ENVOLVENDO $nS + nS$ COM EXCITAÇÃO CONTÍNUA

Neste capítulo, apresentamos os experimentos realizados envolvendo os estados $nS + nS$ excitados com laser azul cw. Os resultados mostram que o processo de transferência de população $nS + nS \rightarrow nP + (n-1)P$, para $39 \leq n \leq 47$, é um processo que envolve dois átomos. Similar ao caso $nD + nD$, realizamos experimentos variando: i) o campo elétrico dc na amostra; ii) o tempo entre excitação e detecção dos átomos de Rydberg. Por fim, investigamos a influência da estrutura hiperfina do estado fundamental no processo de transferência de população.

6.1 Transferências de População em Função do Número Quântico n

Neste primeiro experimento, estudamos o processo de transferência de população $nS + nS \rightarrow nP + (n-1)P$ como função do número quântico n , $39 \leq n \leq 47$, para três campos elétricos externos distintos: 0 V/cm, 0,5 V/cm e 2 V/cm. Para isto, como foi feito na seção 5.1, fixamos a largura do pulso de excitação em 1,2 μs e o tempo de atraso entre excitação e detecção em $\Delta t = 800$ ns. Foram utilizados dois boxcars para medir as populações a partir do sinal de elétrons, o boxcar 1 mede a população no estado nS e o boxcar 2 mede a população em nP . A Figura 6.1 representa a sequência temporal utilizada no experimento.

Figura 6.1 – Sequência temporal do experimento envolvendo $nS + nS$. O tempo de atraso entre excitação e detecção, Δt , foi fixado em 800 ns.

Primeiramente, investigamos se a origem do processo de transferência de população a partir do estado $nS + nS$ é um processo binário como no caso dos estados $nD + nD$. Como foi feito no capítulo 5, variamos a densidade da amostra excitada simplesmente variando a potência do laser de rebombeio e medimos a população em nP com função da densidade da amostra. A Figura 6.2 mostra a dependência da população em nP , no caso específico de $n = 39$, com a densidade (ρ_{nD}).

Figura 6.2 – (a) Dependência da população no estado 39P em função da densidade ρ_{39S} em campo elétrico externo nulo. A curva vermelha é o ajuste teórico com a seguinte expressão $y = x^A$.

O ajuste teórico polinomial feito pela expressão $y = x^A$ nos forneceu $A = 2,1 \pm 0,1$, logo a dependência da população transferida, nP, é quadrática com a densidade da amostra excitada. Sendo assim, podemos afirmar que o processo de transferência de população envolvendo estados nS + nS é um processo de dois corpos, ou seja, binário.

Verificamos nos experimentos envolvendo estados nD + nD tanto com excitação pulsada quanto contínua, que o campo elétrico dc altera as curvas de potenciais e consequentemente muda a taxa de transferência de população. Com o objetivo de verificar se o mesmo ocorre no caso de estados nS + nS medimos a fração de população no estado nP com relação à população no estado nS, nP/nS , em função do número quântico n para três campos elétricos diferentes: 0 V/cm, 0,5 V/cm e 2 V/cm a partir de sinais de varreduras. A Figura 6. 3 ilustra a fração nP/nS em função do número quântico principal, n, para os três campos elétricos externos dc.

Figura 6.3 – Fração medida da população transferida nP/nS em função do número quântico principal, n , para três campos elétricos externos dc diferentes: 0 V/cm (em preto), 0,5 V/cm (em azul) e 2 V/cm (em vermelho).

Podemos notar que a fração nP/nS se comporta de maneira diferente da constante de colisão K vista no capítulo 5, com relação ao campo elétrico externo dc. A Figura 6.3 mostra que praticamente não há influência do campo externo na fração nP/nS . Com estes resultados podemos afirmar que a influência do campo elétrico na transferência de população envolvendo estados $nS + nS$ é praticamente inexistente, isso para a região analisada de $39 \leq n \leq 47$.

Outro fato evidente na Figura 6.3 é a presença de um pico em $n = 45$. Para entender melhor a origem desse pico, analisamos a população dos estados nS em função do número quântico principal para os três campos, 0 V/cm, 0,5 V/cm e 2 V/cm, mostrada na Figura 6.4. Notamos que a população do estado $45S$ também apresenta um pico relevante para os três campos elétricos. A pergunta que devemos nos responder agora é: qual a origem, ou melhor, as origens desse pico em $n = 45$? Para isso, vamos analisar as curvas de potências ao redor de $45S + 45S$ em campo nulo, calculadas por nossos colaboradores sob supervisão do professor Dr. Shaffer da Universidade de Oklahoma, Figura 6.5.

Figura 6.4 – População do estado nS medida no intervalo de $39 \leq n \leq 47$. Os pontos em preto são para campo elétrico externo dc nulo, os pontos em azul são para 0,5 V/cm e os em vermelhos são para 2 V/cm.

Figura 6.5 – Curvas de potenciais ao redor de $45S + 45S$, em campo elétrico nulo, calculadas por Dr. Shaffer, nosso colaborador.

Pela Figura 6. 5, vê-se que a separação de energia assintótica entre o par $45S + 45S$ e o par $45P_{3/2} + 44P_{3/2}$ é aproximadamente $0,1 \text{ cm}^{-1}$, que equivalente a 3 GHz. Uma das contribuições para observarmos um pico em $n = 45$ é o fato de não bloquearmos completamente o feixe de aprisionamento que contém a frequência de rebombeio, próxima a 3 GHz. Quando o feixe de aprisionamento é desligado e o feixe de excitação é ligado via modulador acústico-óptico existe um vazamento de frequência deslocada em +3 GHz e em -3 GHz, geradas pelo modulador eletro-óptico, que contribuem para excitação direta de $45S + 45S$ e $45P_{3/2} + 44P_{3/2}$, Figura 6.6 (a). Outro fator que acreditamos contribuir é o acoplamento do estado $45P$ com o estado $43D$. Como discutimos no capítulo anterior, é sabido que o estado $43D + 43D$ apresenta uma ressonância com o par $45P + 41I$, calculando o momento de dipolo da transição $45P$ - $43D$, encontramos o valor de aproximadamente $1,1540 \times 10^{-26} \text{ C.m}$ que não pode ser ignorado, Figura 6.6 (b). Logo o estado $43D$ também está contribuindo para o pico em $n = 45$, uma vez que ele está acoplado com o estado $45P$ que é um dos estado produto de $45S + 45S$.

Figura 6.6 – (a) Contribuição do vazamento de frequência em + 3 GHz, representado por + e em -3 GHz, representado por -. (b) Momento de dipolo das transições, mostrando que não se pode ignorar o acoplamento de $43D$ - $45P$.

6.2 Evolução Temporal da Transferência de População

Neste experimento, seguimos a mesma sequência temporal mostrada na Figura 6.1, porém o tempo de atraso entre excitação e detecção, Δt , foi variado e o tempo de excitação foi fixado em $1,2 \mu\text{s}$. Desta maneira, medimos a evolução temporal da fração n_P/n_S para $39 \leq n \leq 47$ e para dois campos distintos: $0,5 \text{ V/cm}$ e 2 V/cm até $8 \mu\text{s}$. A Figura 6.7 mostra a evolução temporal para $n = 39$.

Figura 6.7 – Evolução temporal da fração N_{39P}/N_{39S} até $8 \mu\text{s}$. Em azul são os dados em campo elétrico de $0,5 \text{ V/cm}$ e em vermelho os dados em 2 V/cm .

O crescimento próximo de linear da fração N_{39P}/N_{39S} mostrado na Figura 6.7 se repete no domínio $39 \leq n \leq 47$. Notamos que o campo elétrico dc não influencia o processo de evolução temporal, uma vez que a diferença existente entre a evolução temporal nos dois campos diferentes é coberta pela barra de erro experimental. Como não há dependência com o campo elétrico externo dc, nosso objetivo aqui é estudar como a taxa deste crescimento, ou inclinação, varia com o estado quântico n . Como feito no capítulo 5, calculamos a taxa de evolução temporal através de um ajuste linear dos dados experimentais até $4 \mu\text{s}$ em função de n para os dois campos que é mostrada na Figura 6.8. A contribuição de corpo negro para o estado n_P foi desconsiderada neste cálculo, pois através de um modelo de equação de taxa,

similar ao usado nos capítulos 4 e 5, constatamos que a contribuição de corpo negro em até 4 μ s para estados nP é inferior a 1,8% no domínio de $39 \leq n \leq 47$.

Figura 6.8 – Inclinação, ou taxa, da evolução temporal da fração N_{np}/N_{ns} em função do número quântico n. Em azul são os dados em campo elétrico de 0,5 V/cm e em vermelho os dados em 2 V/cm.

Os resultados encontrados para a taxa de crescimento em função do estado quântico n para campos de 0,5 V/cm e 2 V/cm, Figura 6.8, corroboram a afirmação de que o papel do campo elétrico externo dc é nulo no processo de transferência populacional envolvendo estados nS + nS. A inclinação medida até 4 μ s após a excitação se mostra independente do campo elétrico externo dc, a pequena diferença existente é devido ao erro experimental da medida.

Como discutimos no capítulo de Revisão Literária, a excitação pulsada de estados nP a partir de estados nS acontece diretamente devido ao caráter nP que os estados nS apresentam a curta distância e o efeito Stark ac do laser de excitação. As interações dipolares são as responsáveis por esta mistura de estados e o efeito Stark ac devido ao campo eletromagnético oscilatório de excitação desloca o estado intermediário $5P_{3/2} + n\tilde{S}_{1/2}$, colocando a transição $5P_{3/2} + n\tilde{S}_{1/2} \rightarrow n\tilde{P}_{3/2} + (n-1)\tilde{P}_{3/2}$ em ressonância com o laser de excitação, ver referência (32). Tal mecanismo presente na excitação pulsada não apresenta uma evolução temporal, uma vez que a excitação de estados nP é direta, por isso que acreditamos que no

caso de excitação contínua de $nS + nS$ o mecanismo de transferência é diferente do observado na excitação pulsada. Acreditamos que no caso da excitação contínua, a estrutura hiperfina bem como outras frequências envolvidas sejam responsáveis pelo processo. Para testar esta hipótese, resolvemos investigar em detalhes se estrutura hiperfina influencia o processo.

6.3 Influência da Estrutura Hiperfina do Estado Fundamental na População nP

O experimento realizado aqui é idêntico ao realizado no capítulo anterior envolvendo estados $nD + nD$. Como antes, variamos a posição temporal do pulso de excitação azul com relação ao feixe de excitação em 780 nm, ΔT , e fixamos o atraso entre excitação e detecção, Δt , em 800 ns. Primeiramente, Figura 6.9 (a), fixamos em aproximadamente 85 μs o tempo que nosso feixe de excitação em 780 nm ficava ligado e iniciamos a excitação com o pulso de azul cw, de largura de 1 μs , 900 ns antes do feixe em 780 nm, $\Delta T = -900$ ns. Ou seja, apenas 100 ns do pulso azul contribuíam para excitação. Em seguida, Figura 6.9 (b), em passos iniciais de 100 ns deslocávamos o pulso azul para a região de excitação, aumentando até 1 μs o tempo de excitação e $\Delta T = 0$. A partir deste ponto, Figura 6.9 (c), o tempo de excitação era fixado pela largura do pulso azul de 1 μs e o seu deslocamento temporal, ΔT , apenas aumentava seu atraso com relação ao feixe de excitação de 780 nm. Como no caso $nD + nD$ não havia outras frequência envolvidas no processo.

Figura 6.9 – Sequência temporal do experimento $nS + nS$, $\Delta t = 800$ ns. (a) Inicialmente o tempo de excitação era de 100ns. (b) Tempo de excitação de 1 μs e $\Delta T = 0$. (c) Variamos ΔT até 82 μs .

Desta maneira podemos testar se houve excitação do estado $43P$ a partir do estado hiperfino fundamental $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$, pois a medida que aumentamos ΔT esperamos um acúmulo de população no estado $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$, pois não há rebombeio no feixe de excitação em 780 nm. Consequentemente o laser de excitação em 780 nm fica dessintonizado em aproximadamente 3 GHz, separação hiperfina do estado fundamental do Rb. Logo a soma dos

dois fótons (780 nm e 480 nm) de excitação fica fora de ressonância com o estado $43S + 43S$. Porém, a curta distância internuclear a soma dos dois fótons pode entrar em ressonância novamente com o estado $43S + 43S$, como acontece com o caso $nD + nD$, visto no capítulo anterior. A Figura 6.10 ilustra esta situação de excitação de $43P$ a partir do estado hiperfino fundamental.

Figura 6.10 – (a) Esquema de excitação do estado $43P$ a partir do estado hiperfino fundamental $|5P_{3/2}, F=2\rangle$. As setas vermelhas representam os fótons de 780 nm e as setas azuis os fótons de 480 nm. (b) Diferença de energia assintótica entre estados de pares de Rydberg em função do número quântico n .

Utilizando o mesmo modelo com as equações de taxa dos estados fundamentais hiperfinos do ^{85}Rb que foi utilizado no capítulo anterior resolvemos as equações usadas anteriormente, (5.1), (5.2) e (5.3). As população em $|5S_{1/2}, F=3\rangle$ e em $|5S_{1/2}, F=2\rangle$ são mostradas na Figura 6.11. Como vimos no capítulo 5, a resolução das equações de taxa nos diz que após 2 μs praticamente toda a população está no estado hiperfino fundamental

$|5S_{1/2}, F = 2\rangle$. A Figura 6.12 ilustra a razão de população N_{43P}/N_{43S} medida no experimento em função de ΔT .

Figura 6.11 - (a) Modelo para escrever as equações de taxa dos estados hiperfinos do ^{85}Rb . (b) Solução do modelo, em 2 μs praticamente toda a população já está em $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$.

Figura 6.12 - Os pontos em azul é a razão da população em 43P pela população em 43S medida em função do atraso com relação ao feixe de excitação de 780 nm, ΔT . O campo elétrico na amostra é de 0,5 V/cm. A curva em preto é a probabilidade de absorção em função do tempo.

Analisando a Figura 6.12, podemos notar que existe uma razão considerável de população em 43P pela população em 43S para dezenas de microssegundos após o início do feixe de excitação de 780 nm. Como foi feito no experimento envolvendo $nD + nD$ ajustamos os dados por um decaimento exponencial simples ($N_{43P}/N_{43S} = y_0 + Ae^{-\Delta T/\tau}$), que nos fornece um tempo de decaimento, τ , de aproximadamente 40 μs . Como discutimos no capítulo 5, este decaimento medido é devido à redução da probabilidade de absorção do átomo. Tanto maior ΔT , maior o número de fótons que o átomo pode absorver, logo menor a probabilidade de absorção, equação (5.6). Sendo assim, o sistema tem que esperar um tempo maior para absorver o que leva a uma perda no número de átomos. O modelo descrito no capítulo anterior prevê um tempo de decaimento de aproximadamente 40 μs , e é mostrado na Figura 6.12 (curva preta).

Posto isto, podemos afirmar que como no caso do experimento envolvendo átomos em $nD + nD$, aqui também ocorre excitação direta do estado 43P a partir do estado hiperfino fundamental $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$, uma vez que a fração N_{43P}/N_{43S} é diferente de zero para dezenas de microssegundos. Este resultado é bastante importante, já que não encontramos na literatura

modelos ou experimentos que considerem a influência do estado fundamental hiperfino em processos de transferência de população.

7 CONCLUSÃO E PERSPECTIVAS

Neste trabalho, realizamos importantes experimentos envolvendo processos de transferência de população, os quais nos permitiram avançar consideravelmente no entendimento das interações de ultralongo entre átomos de Rydberg frios. Sem dúvida, a colaboração com o grupo do Prof. Dr. Shaffer foi de fundamental importância neste trabalho. Como já mencionamos, entender essas interações e estes processos de transferência populacional na sua forma mais elementar representa um significativo avanço na área de física atômica e um importante passo em uma eventual aplicação em computação quântica.

Nos experimentos com excitação pulsada, estudamos o papel do efeito Stark dc na transferência de população do estado $nD + nD$ para o estado $(n+2)P$. A teoria proposta, usando o modelo semiclássico de Landau–Zener, foi capaz de reproduzir tanto qualitativamente quanto quantitativamente os resultados experimentais. Tal proposta sugere que o caráter multiníveis da interação não pode ser ignorado, uma vez que mostramos que apesar das interações quadrupolo-quadrupolo serem inferiores a 0,01% podem mudar drasticamente os cruzamentos das curvas de potenciais a curto alcance, alterando os resultados observados.

Mostramos que o efeito Stark dc pode ser usado para manipular os pares atômicos e as transferências de população, pois a constante de taxa de colisão pode mudar por um fator 3–4 com uma pequena mudança de campo elétrico. Os pares atômicos, tanto com alta quanto com baixa componente de momento angular l , podem ser particularmente sensíveis a campos elétricos e acoplam fortemente com pares de baixo momento angular l . Finalmente, nós observamos um efeito de evolução temporal que sugere que a figura de dependência temporal pode ser apropriada para alguns experimentos envolvendo átomos de Rydberg frios. Isto é interessante porque sugere um procedimento de estudo de dinâmica, tanto envolvendo átomos de Rydberg frios quanto moléculas em um regime temporal de microssegundos onde as medidas experimentais podem ser facilmente comparadas a cálculos de primeiros princípios. Embora o modelo teórico não seja novo, comparando o cálculo de Landau–Zener com nosso experimento nós conseguimos clarear alguns aspectos da dinâmica do par atômico $nD + nD$ que ocorre em amostras de gases de Rydberg ultrafrios.

Nos experimento envolvendo $nD + nD$ com excitação contínua, observamos transferência de população com resolução na escala da estrutura fina. Tal processo de

transferência, assim como nos experimentos com excitação pulsada, foi verificado como sendo um processo binário, ou seja, conta com dois átomos envolvidos. Como no caso de excitação pulsada, verificamos que o campo elétrico dc pode ser usado para manipular o processo de transferência, uma vez que medimos diferentes constantes de taxa de colisão para diferentes campos elétricos. O modelo semiclássico de Landau–Zener concordou razoavelmente bem com as medidas experimentais. Acreditamos que discrepância ocorrida na região de $n = 42$ e 43 é devida à grande mistura de curvas de potenciais, o que pode ter levado o algoritmo de busca por cruzamentos a falhar e consequentemente obtemos uma probabilidade diferente da real.

Com relação ao experimento de evolução temporal, podemos concluir primeiramente que o campo elétrico dc altera a dinâmica do processo. Acreditamos que este processo é resultado da excitação do par atômico $nD + nD$ com subsequente evolução temporal, similar ao que ocorre na excitação pulsada. Entretanto, o cálculo teórico ainda está em processamento. A comparação das medidas da fração $(n+2)P/nD$ em função do tempo de excitação com um modelo de equações de taxa lineares mostraram que a radiação de corpo negro não é a responsável pelo processo de transferência populacional.

Por fim, constatamos que a estrutura hiperfina do estado fundamental deve ser levada em consideração no estudo destas transferências de população, pois verificamos que a curta distância pode ocorrer excitação direta de estados $(n+2)P$. Verificamos que o simples modelo de probabilidade de absorção de fótons concorda bem com os dados experimentais, mostrando uma perda de átomos após dezenas de microssegundos. Contudo, mais experimentos nesta área precisam ser realizados.

Nos últimos experimentos, envolvendo estados $nS + nS$, constatamos que o processo de transferência populacional para estados nP também é um processo binário. Com relação ao campo elétrico dc, concluímos que diferentemente do observado nos experimentos com estados nD , campos de até 2 V/cm não alteram o processo de transferência. Nas medidas de fração de população nP/nS , acreditamos que dois fatores contribuem para uma maior população do estado $45S$ e consequentemente a população produto $45P$; o primeiro deles é a influência estado $43D$ uma vez que o acoplamento entre $43D$ - $45P$ é considerável e outro é a possibilidade de vazamento de frequência deslocada em $\pm 3 \text{ GHz}$ que excitaria diretamente o estado $45P$ a curta distância. Verificamos, que como no caso de nD com excitação contínua, a estrutura hiperfina do estado fundamental é importante no processo de transferência de população, podendo ocorrer excitação direta do estado nP a curta distância. Novamente, como no caso de $nD + nD$, o modelo proposto baseado em probabilidade de absorção de fóton

explica a perda de átomos observada na escala de dezenas de microssegundos quando variamos o atraso do laser azul em relação ao laser infravermelho de excitação.

A respeito da criação do “qubit” e progressos na área de computação quântica, nosso trabalho impõe algumas restrições. Pois o estado par atômico quase-molecular que excitamos, $nD + nD$ e $nS + nS$, leva o sistema a decoerência e destrói o qubit. A mesma interação de ultralongo alcance que produz o estado emaranhado é responsável pelo aparecimento do estado par atômico quase-molecular. Como perspectiva deste trabalho, podemos apontar o estudo desses processos de transferência de população em amostra mais densas. Para isso, já temos em nosso grupo uma armadilha óptica de dipolo funcionando com densidade de 1×10^{12} átomos /cm³ e alguns resultados preliminares de excitação de átomos de Rydberg nesta armadilha. Outra proposta interessante é estudar a anisotropia do campo elétrico dc, aplicando-o em outras direções e observando como o processo de transferência populacional se comporta. Segue como um desafio na área de Rydberg frios propor mecanismos que evitem processos de decoerência. Uma ideia seria separar espacialmente os átomos de Rydberg em uma rede óptica de laser de CO₂ por $d = \frac{\lambda}{2} \cong 5 \mu\text{m}$. Como vimos que os estados de pares atômicos quase-moleculares são criados a distância menores que $2 \mu\text{m}$, esta seria uma maneira possível de criar estados emaranhados e preservar o qubit.

REFERÊNCIAS

- 1 STEBBINGS, R. F.; DUNNING, F. B. **Rydberg states of atoms and molecules**. Cambridge: Cambridge University Press, 1983. 526p

- 2 GALLAGHER, T. F. **Rydberg atoms**. Cambridge: Cambridge University Press, 1994. 495p

- 3 GALLAGHER, T. F. Doubly excited states. **Journal of the Optical Society of America B**, v. 4, n. 5, p. 794-804, 1987.

- 4 COOKE, W. E.; GALLAGHER, T. F. Measurement of $1D_2 \rightarrow 1F_3$ microwave transitions in strontium Rydberg states using selective resonance ionization. **Optics. Letters**, v. 4, n. 6, p. 173-175, 1979.

- 5 METCALF, H. J.; VANDER STRATEN, P. **Laser cooling and trapping**. New York: Springer-Verlag, 1999. 323p

- 6 MOURACHKO, I. et al. Many-body effects in a frozen Rydberg gas. **Physical Review Letters**, v. 80, n. 2, p. 253-256, 1998.

- 7 ANDERSON, W. R.; VEALE, J. R.; GALLAGHER, T. F. Resonant dipole-dipole energy transfer in a nearly frozen Rydberg gas. **Physical Review Letters**, v. 80, n. 2, p. 249-252, 1998.

- 8 JAKSCH, D. et al. Fast quantum gates for neutral atoms. **Physical Review Letters**, v. 85, n. 10, p. 2208-2211, 2000.

- 9 SAFFMAN, M.; WALKER, T. G. Analysis of a quantum logic device based on dipole-dipole interactions of optically trapped Rydberg atoms. **Physical Review A**, v. 72, n. 2, p. 022347, 2005.

- 10 LUKIN, M. D. et al. Dipole blockade and quantum information processing in mesoscopic atomic ensembles. **Physical Review Letters**, v. 87, n. 3, p. 037901, 2001.

- 11 NIELSEN, M. A.; CHUANG, I. L. **Quantum computation and quantum information**. Cambridge: Cambridge University Press, 2000. 700p

- 12 URBAN, E. et al. Observation of Rydberg blockade between two atoms. **Nature Physics**, v. 5, n. 2, p. 110-114, 2009.
- 13 GAETAN, A. et al. Observation of collective excitation of two individual atoms in the Rydberg blockade regime. **Nature Physics**, v. 5, n. 2, p. 115-118, 2009.
- 14 HEIDEMANN, R. et al. Evidence for Coherent collective Rydberg excitation in the strong blockade regime. **Physical Review Letters**, v. 99, n. 16, p. 163601, 2007.
- 15 ZUO, Z.; NAKAGAWA, K. I. Multiparticle entanglement in a one-dimensional optical lattice using Rydberg-atom interactions. **Physical Review A**, v. 82, n. 6, p. 062328, 2010.
- 16 ZANON, R. A. D. S. et al. Time-resolved study of energy-transfer collisions in a sample of cold rubidium atoms. **Physical Review A**, v. 65, n. 2, p. 023405, 2002.
- 17 NASCIMENTO, V. A. et al. Motion in an ultralong-range potential in cold-Rydberg-atom collisions. **Physical Review A**, v. 73, n. 3, p. 034703, 2006.
- 18 DE OLIVEIRA, A. L. et al. Rydberg cold collisions dominated by ultralong range potential. **Physical Review Letters**, v. 90, n. 14, p. 143002, 2003.
- 19 TANNER, P. J. et al. Many-body ionization in a frozen Rydberg gas. **Physical Review Letters**, v. 100, n. 4, p. 043002, 2008.
- 20 HAN, J.; GALLAGHER, T. F. Field ionization of the frozen Rydberg gas. **Physical Review A**, v. 77, n. 1, p. 015404, 2008.
- 21 BRANDEN, D. B. et al. Radiative lifetime measurements of rubidium Rydberg states. **Journal of Physics B: atomic, molecular and optical physics**, v. 43, n. 1, p. 015002, 2010.
- 22 ROBINSON, M. P. et al. Spontaneous evolution of Rydberg atoms into an ultracold plasma. **Physical Review Letters**, v. 85, n. 21, p. 4466-4469, 2000.
- 23 KILLIAN, T. C. et al. Formation of Rydberg atoms in an expanding ultracold neutral plasma. **Physical Review Letters**, v. 86, n. 17, p. 3759-3762, 2001.
- 24 GNEDIN, Y. N. et al. Rydberg atoms in astrophysics. **New Astronomy Reviews**, v. 53, n. 7-10, p. 259-265, 2009.

- 25 GREENE, C. H.; DICKINSON, A. S.; SADEGHPOUR, H. R. Creation of polar and nonpolar ultra-long-range Rydberg molecules. **Physical Review Letters**, v. 85, n. 12, p. 2458-2461, 2000.
- 26 BOISSEAU, C.; SIMBOTIN, I.; CÔTÉ, R. Macrodimers: ultralong range Rydberg molecules. **Physical Review Letters**, v. 88, n. 13, p. 133004, 2002.
- 27 KILIAN, S. et al. Long-range interactions between alkali Rydberg atom pairs correlated to the $n\ s - n\ s$, $n\ p - n\ p$ and $n\ d - n\ d$ asymptotes. **Journal of Physics B: atomic, molecular and optical physics**, v. 38, n. 2, p. S295, 2005.
- 28 CABRAL, J. S. **Ressonâncias moleculares em átomos de Rydberg frios**. 2009. 69p. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2009.
- 29 SCHWETTMANN, A. et al. Cold Cs Rydberg-gas interactions. **Physical Review A**, v. 74, n. 2, p. 020701, 2006.
- 30 OVERSTREET, K. R. et al. Photoinitiated collisions between cold Cs Rydberg atoms. **Physical Review A**, v. 76, n. 1, p. 011403, 2007.
- 31 NASCIMENTO, V. A. et al. Electric field effects in the excitation of cold Rydberg-atom pairs. **Physical Review Letters**, v. 102, n. 21, p. 213201, 2009.
- 32 CABRAL, J. S. et al. Effects of electric fields on ultracold Rydberg atom interactions. **Journal of Physics B: atomic, molecular and optical physics**, v. 44, n. 18, p. 184007, 2011.
- 33 AUTLER, S. H.; TOWNES, C. H. Stark effect in rapidly varying fields. **Physical Review**, v. 100, n. 2, p. 703-722, 1955.
- 34 SAFFMAN, M.; WALKER, T. G.; MØLMER, K. Quantum information with Rydberg atoms. **Reviews of Modern Physics**, v. 82, n. 3, p. 2313-2363, 2010.
- 35 ISENHOWER, L. et al. Demonstration of a neutral atom controlled-NOT quantum gate. **Physical Review Letters**, v. 104, n. 1, p. 010503, 2010.
- 36 REMPE, G.; WALTHER, H.; KLEIN, N. Observation of quantum collapse and revival in a one-atom maser. **Physical Review Letters**, v. 58, n. 4, p. 353-356, 1987.

- 37 BRUNE, M. et al. Observing the progressive decoherence of the “Meter” in a quantum measurement. **Physical Review Letters**, v. 77, n. 24, p. 4887-4890, 1996.
- 38 HAGLEY, E. et al. Generation of Einstein-Podolsky-Rosen pairs of atoms. **Physical Review Letters**, v. 79, n. 1, p. 1-5, 1997.
- 39 MILLER, J. D.; CLINE, R. A.; HEINZEN, D. J. Far-off-resonance optical trapping of atoms. **Physical Review A**, v. 47, n. 6, p. R4567-R4570, 1993.
- 40 TAKEKOSHI, T.; YEH, J. R.; KNIZE, R. J. Quasi-electrostatic trap for neutral atoms. **Optics Communications**, v. 114, n. 5-6, p. 421-424, 1995.
- 41 TAKEKOSHI, T.; KNIZE, R. J. CO₂ laser trap for cesium atoms. **Optics Letters**, v. 21, n. 1, p. 77-79, 1996.
- 42 GRANADE, S. R. et al. All-optical production of a degenerate Fermi gas. **Physical Review Letters**, v. 88, n. 12, p. 120405, 2002.
- 43 RAAB, E. L. et al. Trapping of neutral sodium atoms with radiation pressure. **Physical Review Letters**, v. 59, n. 23, p. 2631-2634, 1987.
- 44 COOK, R. J. Atomic motion in resonant radiation: an application of Ehrenfest's theorem. **Physical Review A**, v. 20, n. 1, p. 224-228, 1979.
- 45 FOOT, C. J. **Atomic Physics**. Oxford: Oxford University Press, 2005. 331p
- 46 WIEMAN, C.; HÄNSCH, T. W. Doppler-free laser polarization spectroscopy. **Physical Review Letters**, v. 36, n. 20, p. 1170-1173, 1976.
- 47 MENEGATTI, C. R. **Armadilha de dipolo para átomos e moléculas**. 2011. 162p. Tese (Doutorado). Instituto de Física de São Carlo, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2011.
- 48 MARANGONI, B. S. **Moléculas frias em armadilhas ópticas**. 2009. 84p. Dissertação (Mestrado). Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2009.
- 49 HANSCH, T. W.; COUILLAUD, B. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity. **Optics Communications**, v. 35, n. 3, p. 441-444, 1980.

50 SCHMITT, M. et al. Electronic continua in time-resolved photoelectron spectroscopy. II. Corresponding ionization correlations. **The Journal of Chemical Physics**, v. 114, n. 3, p. 1206-1213, 2001.

51 CABRAL, J. S. et al. Manipulation of quantum state transfer in cold Rydberg atom collisions. **New Journal of Physics**, v. 12, n. 9, p. 093023, 2010.

52 LAMBRECHT, A. et al. Squeezing with cold atoms. **Europhysics Letters.**, v. 36, n. 2, p. 93-98, 1996.