Universidade de São Paulo
Instituto de Física de São Carlos
Departamento de Física e Ciências de Materiais

Dinâmica de Colisões entre Átomos de Rydberg Frios

Valter Aragão do Nascimento

Tese apresentada ao Instituto de Física de São Carlos, da Universidade de São Paulo, para a obtenção do título de Doutor em Ciências: Física básica.

Orientador: Prof. Dr. Luis Gustavo Marcassa.

São Carlos

2006

CK
USP/IFSC/SBI
8-2-001768
IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

Nascimento , Valter Aragão do
Dinâmica de Colisões entre Átomos de Rydberg Frios/ Valter Aragão do Nascimento – São Carlos, 2006.
150p

Tese (Doutorado) –Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo 2006.

Orientador: Luis Gustavo Marcassa.

I. Estudo de Colisões Atômicas teórico e experimental,
II . Armadilha Magneto Óptica.
III Colisão de dois corpos

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
Instituto de Física de São Carlos

Caixa Postal 369
13560-970 São Carlos, SP
Av. Trabalhador São-carlense, 400,
13560-970 São Carlos, SP

Fone/Fax 16 3373 9777
www.if.sc.usp.br
wladerez@ifsc.usp.br

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE VALTER ARAGÃO DO NASCIMENTO APRESENTADA AO INSTITUTO DE FÍSICA DE SÃO CARLOS, UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO, EM 25/09/2006.

COMISSÃO JULGADORA:

Prof. Dr. Luis Gusavo Marcassa (Orientador e Presidente) – IFSC/USP

Prof. Dr. Valter Luis Libero – IFSC/USP

Prof. Dr. Luiz Eugênio Machado – UFSCar

Sandra S. Vianna

Profa. Dra. Sandra Sampaio Vianna - UFPe

Dr. Lino Misoguti – IFSC/USP

Comissão Julgadora:

FSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

Dedicatória:

Este trabalho é dedicado
aos meus irmãos
Valdir e Miriam e aos meus pais
José Francisco e Jandira A. Nascimento.

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Dr. Luis Gustavo Marcassa, que me concedeu a oportunidade de trabalhar no seu grupo e por ter me orientado nesta longa jornada, e pelas nossas constantes discussões sobre a importância da física teórica e experimental.

Ao Prof. Dr. Vanderlei Salvador Bagnato pelos seus conselhos e sua co-orientação.

Ao mestre com carinho Prof. Dr. Reginaldo de Jesus Napolitano pelas sugestões e criticas durante a realização deste trabalho.

Aos meus companheiros de laboratório, Baca (Renato), Gustavo, André e em especial ao Lucas Calliri pelo ajuda na realização do experimento. Ao Daniel Varella pelos ensinamentos em LabView. Ao Anderson Caíres e Lino pela aprendizagem e ensinamentos nos Lasers.

Ao meu amigo Edmir pelos momentos de reflexão na sexta feira no Caaso e a Bruna por sua eterna paciência quando tomávamos todas; a Marilia que sempre me apoiou em todos os momentos; ao Daniel Correa pelas eternas indecisões, Ubaldão pela tranqüilidade; Marcão (pelas mentiras); P.H; Jonas, Pirata (Fernando) e Mrs. Crash. Alessandra (Le), Alexandre (Alfe) e ao Gama pela amizade. Aos amigos de república Person (PePe), Lauro (mau-mau), Fabrizio (véio) e Gnu (Rogério).

As minhas companheiras de sala Aida e Stella por estarem ao meu lado por todos estes anos, meu muito obrigado.

A Izabel e a Bene pela ajuda e auxilio durante a minha estadia no Grupo de Óptica.

A Daniella C. Berto, Valdir e meus pais pelo apoio e amor que me deram durante todos estes anos.

Sumário

I. Lista de Figuras.....viii

II. Lista de Tabelas.....xiv

III. Resumo.....xv

IV. Abstract.....xvi

1 Introdução: Uma Visão Geral 1

2 Aspectos Teóricos e Experimentais.. **16**

2.1 Introdução.....16

2.2 Aspectos Teóricos dos Átomos de Rydberg.....18

2.3 Efeito Stark em Átomos de Rydberg.....25

2.4 Efeito da Radiação do Corpo Negro sob Transições Atômicas.....27

2.5 Primeiros Experimentos Com Átomos de Rydberg Frios.....30

2.6 Modelo Teórico de Colisões de Dois Corpos.....35

3 Montagem Experimental **46**

3.1 Armadilha Magneto-Óptica (AMO).....46

3.2 Aprisionamento dos Átomos de ^{85}Rb.....48

3.3 Sistema de Excitação.....53

3.4 Sistema de Detecção.....56

3.4.1 Sistema de Ionização por Campo Seletivo.....59

3.4.2 Gerando Campo Elétrico Ionizante.....60

3.5 Esquema Temporal.....63

4 Colisões com Átomos de Rydberg Controladas por Campo Elétrico **67**

4.1 Introdução.....67

4.2 Dependência com o Campo Elétrico.....68

4.3 Estudo da Dinâmica de População em Função do Campo Elétrico.....73

5 Colisões com Átomos de Rydberg Frios nos Estados $nS_{1/2}$ e nD_j 87

5.1 Introdução 87

5.2 Colisões $nS_{1/2} + nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n-1)P_{3/2}$: Dependência com a densidade atômica.....89

5.3 Colisões $nS_{1/2} + nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n-1)P_{3/2}$: Dependência temporal.....98

5.4 Colisões $nD_J + nD_J \rightarrow (n+2)P_J + (n-2)K$: Dependência com a densidade atômica.....102

5.5 Colisões $nD_J + nD_J \rightarrow (n+2)P_J + (n-2)K$: Dependência temporal.....109

5.6 Aplicação do modelo de Colisões de dois corpos.....111

6 Conclusões e Perspectivas Futuras 121

Anexo A: Publicação em Periódicos 126

Anexo B: Artigo submetido à publicação: Phys. Rev. A 130

Listas de Figuras

2.1 Representação das funções de onda do Hidrogênio e dos átomos alcalinos. A curva preta representa a função de onda para os átomos de Hidrogênio e a curva vermelha representa a função de onda para os alcalinos. O potencial mais baixo dos alcalinos introduz um deslocamento radial, δ. Este deslocamento leva a um decréscimo das energias nos estados de baixo l dos alcalinos em relação ao hidrogênio.....23

2.2 Esquema representando o processo de colisão ressonante de energia. Mostramos que os níveis de energia atômico depende do parâmetro de controle ξ. Note que $|W_1' - W_1| = |W_2' - W_2|$ indica a posição de ressonância. μ_1 e μ_2 são os elementos de dipolo da matriz das transições permitidas.....26

2.3 Espectros de ionização por campo para diferentes tempos de atraso após o laser excitar átomos de Xe para o nível 26*f* mostrando a radiação de corpo negro induzindo transições para altos níveis. Tempos de exposição dos átomos expostos à radiação térmica por períodos de 1,5 μs, 7,5 μs e 15,5 μs [24, 25]..... 29

2.4 (a) Mapa Stark para um átomo de Cs isolado em campo elétrico para o número quântico $n = 23$. Estados de Rydberg *S*, *P*, e *D* estão juntos com os múltiplos desdobramentos Stark. O cruzamento evitado dos níveis e múltiplos desdobramentos estão localizados distantes das ressonâncias para excluir qualquer influência. A separação dos estados $|m| = 1/2$ e $|m| = 3/2$ para o nível $np_{3/2}$ é da ordem de 1,2 GHz. (b) ilustração elementar do processo de troca de excitação no qual inclui a criação de um par *ss'* em um par (A+B) e subseqüentemente evoluindo para estados C, D, etc. para longas distâncias, e o correspondente esquema dos níveis (c) para os pares (A+B) envolvidos entre os outros átomos do sistema.....32

2.5 Transferência de energia ressonante para a Eq. 2.7 dos estados $23P_{3/2}$ com $|m| = 1/2$. O estado proveniente das interações $24s_{1/2}$ como função do atraso controlado pelo campo *E*. As respectivas densidades dos átomos de Cs ($23P_{3/2}$, $|m| = 1/2$) são: (a) 4×10^8 cm^{-3}, (b) 7×10^8 cm^{-3}, (c) 4×10^9 cm^{-3} e 10^{10} cm^{-3}..... 33

2.6 Diagrama esquemático do processo colisional: o par inicia a colisão no potencial $nS + nS$ e termina o processo no potencial $nP + (n-1)P$. O cruzamento na região de curto alcance está apenas esquematizado aqui.....36

2.7 Evolução do número total de pares que sofrem colisão, os pontos são os resultado experimentais; a curva representa o comportamento previsto pelo modelo, o único parâmetro livre nesta curva é a probabilidade *q*, tomamos para este exemplo $q = 0,5$.. 41

3.1 Diagrama esquemático da configuração das bobinas na configuração anti-Helmoholtz da AMO e a as três feixes de lasers com as respectivas polarizações σ^+ e σ^-.As correntes das bobinas estão em direções opostas.....48

3.2 Fotografia mostrando a parte superior da armadilha, (a) Nossa câmara consiste de 14 janelas de acesso na qual contem na entrada sílica(vidro), (b) bobinas de compensação na configuração anti-Helmoltz , (c) a fonte de Rb (*dispenser*) e o detector são colocados em umas janelas separadas.....49

3.3 Esquema geral da montagem experimental, mostrando os lasers responsáveis pelo funcionamento da armadilha, o laser pulsado (azul), sistema de imagem. (câmara CCD) e o detector de íons/elétron.....51

3.4 Representação esquemática dos níveis atômicos hiperfinos do Rudibio, onde podemos observar as transições de aprisionamento e rebombeio. O dessintonia de aprisionamento do Rb é Δ_{Rb} = -10 MHz.....52

3.5 Os átomos são excitados para os estados (*nl*) de Rydberg a partir do estados $5P_{3/2}$ através da transição de um fóton. A fotoexcitação para os níveis de Rydberg depende do comprimento de onda do laser pulsado, o qual pode variar entre λ = 470 nm e λ = 485 nm.....53

3.6 Laser corante pulsado; (1) primeiro estagio (oscilador), e (2) segundo estágio (amplificador), seu papel é excitar os átomos que estão no estado $5P_{3/2}$ para o estado de Rydberg selecionado.....54

3.7 Espectro dos estados de Rydberg para o do ^{85}Rb. Átomos são excitados pelo laser pulsado a partir do estado $5P_{3/2}$ para os respectivos estados de Rydberg, $nS_{1/2}$ e nD_j.....55

3.8 Esquema de Ionização por campo dos estados de Rydberg. O gráfico no topo mostra a dependência do campo elétrico ***E*** com o tempo, iniciado depois dos estados de Rydberg serem excitados pelo pulso de luz. Para um t_1 e t_2, o campo elétrico alcança o limiar da ionização E_1 e E_2 dos estados de Rydberg $\boldsymbol{n_1}$ e $\boldsymbol{n_2}$. O gráfico abaixo corresponde ao sinal de ionização dos níveis $\boldsymbol{n_1}$ e $\boldsymbol{n_2}$.....58

3.9 Esquema do potencial atômico e campo aplicado: (a) em t = 0, estados excitados n_1 e n_2 com suas respectivas energias de ligação E_1 e E_2 na ausência de campo elétrico. (b) em t_1, o elétron no estado de Rydberg n_1 sentira a presença do campo ionizante primeiro, e (b) logos depois, em t_2, o estado *n*..... 60

3.10 Posicionamento das grades e detector no interior da câmara de aprisionamento. A grade direita é usada para a ionização e a esquerda apenas utilizamos quando pretendemos estudar colisões ressonantes na presença de um campo estático ..61

3.11 Sinal de elétrons resolvido no tempo onde são observados os diferentes estados atômicos antes da colisão e após colisão, utilizando a técnica de ionização por campo seletivo. Os sinais de elétrons resolvido no tempo t_1 e t_2 correspondem aos estados $32P_{3/2}$ e $32S_{1/2}$.....63

3.12 Esquema temporal dos experimentos envolvendo produção de átomos de Rydberg. A ionização e a detecção do sinal de elétrons. 3.a) lasers de aprisionamentos ligados, 3.b) laser de excitação, 3c) campo ionizante: Δt variável entre excitação e detecção. 3.d) sinal de elétrons, antes e depois da colisão.....64

3.13 Esquema dos sistemas de detecção e aquisição de dados.....65

4.1 Diagrama esquemático com o valor dos níveis de energia para o átomo de ^{85}Rb e o processo de transferência de energia ressonante em função do campo elétrico. As setas apenas indicam as posições de ressonâncias para as respectivas combinações de m_j. O cálculo das energias consta na ref.[8].....70

4.2 Sinal de elétrons resolvido no tempo obtido após um tempo de interação de 8 μs, os estado $32P_{3/2}$ e $32S_{1/2}$ estão assinalados. A curva preta representa o sinal de elétrons para um campo elétrico estático de $E \approx 6.7\ V/cm$. Observamos claramente o estado $32P_{3/2}$, mas não ocorre colisão com transferência de energia para o estado $32S_{1/2}$. Ao contrario, ao aplicarmos um campo ressonante obtemos um sinal da colisão. A curva vermelha representa a colisão na presença de um campo elétrico estático de $E \approx 10,5\ V/cm$, onde ocorre a colisão ressonante para $m_j = 1/2 + 1/2$. O sinal dos estados $32P_{3/2}$ e $32S_{1/2}$ é evidente. 71

4.3 População do estados $32S_{1/2}$ em função do campo elétrico estático aplicado, para um tempo de interação $\Delta t = 8\mu s$. Os três picos referem-se as ressonâncias para os diferentes valores de m_j. $|m_j| = 1/2 + 1/2$, $|m_j| = 1/2 + 3/2$, $|m_j| = 3/2 + 3/2$. Na figura 4.3 (a) não removemos o decaimento espontâneo nem radiação de corpo negro. Na figura 4.3 (b) o sinal de fundo de população em $32S_{1/2}$ foi removido.....72

4.4 Evolução temporal para diferentes valores de campo elétrico para o caso $|m_j| = 1/2 + 1/2$. Os respectivos valores de campo elétrico aplicado são: a) 8,33 V/cm, b) 10,16 V/cm, c) 10.25 V/cm e d) 10.29 V/cm. Observe que há um deslocamento do pico da curva no tempo a medida que nos aproximamos da ressonância.....75

4.5 Evolução temporal para diferentes valores de campo elétrico para o caso $|m_j| = 1/2 + 1/2$. e) 10,33 V/cm, f) 10,35 V/cm, g) 10,43 V/cm e h) 10,49 V/cm. Observe que há um deslocamento do pico da curva no tempo, a medida que os valores de campo aproximam-se do valor campo ressonante 10,5 V/cm. 76

4.6 População no estado $32S_{1/2}$ em função do tempo. A linha preta é a curva experimental para um campo de 8.33V/cm e a vermelha é a curva do modelo de taxa que considera decaimento e redistribuição de população devido à radiação de corpo negro.....79

4.7 Evolução temporal para diferentes valores de campo elétrico para o caso $|m_j| = 1/2 + 1/2$. Após subtrair as curvas em preto representam os dados experimentais para os respectivos campos elétricos aplicados. As curvas em vermelho/azul

representam o comportamento previsto pelo modelo para q = 0,2 e 0,01: a) 10,16 V/cm, b) 10.25 V/cm e c) 10.29 V/cm.....80

4.8 Evolução temporal para diferentes valores de campo elétrico para o caso $|m_j|$ = 1/2 + 1/2. Após subtrair as curvas em preto representam os dados experimentais para os respectivos campos elétricos aplicados. As curvas em vermelho/azul representam o comportamento previsto pelo modelo para q = 0,2 e 0,01: d) 10,33 V/cm, e) 10,35 V/cm, f) 10.43 V/cm e g) 10.49 V/cm.....81

4.9 a) Velocidade no cruzamento em função da separação internuclear de excitação e para diferentes campos. b) Tempo de viagem necessário para ir da separação internuclear de excitação ao cruzamento para os vários campos.....83

5.1 Diferença de energia entre os canais de entrada e saída dos dois processos colisionais estudados.....89

5.2 Sinal de elétrons resolvido no tempo obtido após um tempo de interação de 8μs. A curva vermelha representa o sinal de colisão $32P_{3/2}$ + $32P_{3/2} \rightarrow 32S_{1/2}$. A curva em azul representa o sinal das colisões $32S_{1/2}$ + $32S_{1/2} \rightarrow 32P_{3/2}$. Os estados $32S_{1/2}$ e $32P_{3/2}$ estão mostrados no gráfico.....90

5.3 Evolução temporal da população $32S_{1/2}$ (curva vermelha) antes e $32P_{3/2}$ (curva preta). A população em $32P_{3/2}$ é produzida pelo canal de colisão $32S_{1/2}$ + $32S_{1/2} \rightarrow 32P_{3/2}$ em função do tempo de interação. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.....91

5.4 Comportamento da população $32P_{3/2}$ em função da densidade em $32S_{1/2}$. As curvas estão deslocadas na vertical para melhor visualização das mesmas. Conforme aumentamos o tempo de interação, a curva deixa de apresentar um comportamento quadrático e passa a apresentar um linear. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.....92

5.5 Comportamento do parâmetro B em função do tempo de interação. Vemos que conforme aumentamos o tempo de interação o parâmetro B diminui, indo de um comportamento quadrático para linear.....93

5.6 Comportamento do parâmetro teórico B em função do tempo de interação. Vemos que conforme aumentamos o tempo de interação o parâmetro B diminui, indo de um comportamento quadrático para linear. Neste caso γ_c = 1000 $A_{32P\text{-}32S}$.....96

5.7 Gráfico do comportamento da população $nP_{3/2}$ em função da densidade atômica em $nS_{1/2}$, para um tempo de interação fixo de 4 μs. Vemos que as populações $nP_{3/2}$ apresenta um comportamento quadrático indicando que trata-se de um processo de dois corpos. Os resultados foram normalizados para permitir uma comparação mais clara.....97

5.8 Gráficos da evolução temporal da população $nP_{3/2}$ proveniente da colisão: $nS_{1/2}$ + $nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2}$ + $(n\text{-}1)P_{3/2}$ para n = 29 até 32, em função do tempo de interação.....99

5.9 Gráficos da evolução temporal da população $nP_{3/2}$ proveniente da colisão: $nS_{1/2} + nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n-1)P_{3/2}$ para n = 33 até 36, em função do tempo de interação.....100

5.10 Gráficos da evolução temporal da população $nP_{3/2}$ proveniente da colisão: $nS_{1/2} + nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n-1)P_{3/2}$ para n = 37 até 40, em função do tempo de interação.....101

5.11 - Evolução temporal do modelo de equações de taxa para a população em 32P: a) contribuição devido apenas a radiação de corpo negro, b) contribuição devido apenas a colisões; c) devido as duas contribuições.....102

5.12 Gráfico de sinal de elétrons resolvido no tempo para a colisão $30D_J + 30D_J \rightarrow 28K + 32P_J$. A curva em preto é obtida quando excitamos o estado $32P_J$; a em verde corresponde a excitação do estado $31P_J$. Em vermelho temos o sinal após a excitação do estado $30D_J$. O pico maior é o estado $30D_J$ e o menor é estado $32P_J$.....103

5.13 Gráfico da evolução da população nos estados $30D_J$ (preto) e $32P_J$ (vermelho) após colisão. As populações são produzidas pelo canal de colisão $30D_J + 30D_J \rightarrow 28K + 32P_J$ em função do tempo de interação. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.....104

5.14 Comportamento da população $32P_{3/2}$ em função da densidade em $30D_J$. As curvas estão deslocadas na vertical para melhor visualização das mesmas. Conforme aumentamos o tempo de interação, a curva deixa de apresentar um comportamento quadrático e passa a apresentar um linear. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.....105

5.15 Comportamento do parâmetro B em função do tempo de interação. Vemos que conforme aumentamos o tempo de interação o parâmetro B diminui, indo de um comportamento quadrático para linear.....106

5.16 Gráfico do comportamento da população $(n+2)P_J$ em função da densidade atômica no estado nD_J, para um tempo de interação de 10 μs. Vemos que $(n+2)P_J$ apresenta um comportamento quadrático indicando que trata-se de um processo de dois corpos. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.....107

5.17 Gráficos da evolução temporal da população $nD_J + nD_J \rightarrow (n+2)P_J + (n-2)K$, para n = 27 a 30. 109

5.18 Gráficos da evolução temporal da população $nD_J + nD_J \rightarrow (n+2)P_J + (n-2)K$, para n = 31 a 35. 110

5.19 Níveis de energias para as transições $39S_{1/2}39S_{1/2}$ -$39S_{1/2}39P_{3/2}$ em função da separação internuclear R. A freqüência de transições atômicas entre $39S_{1/2}$ e $39P_{3/2}$ é 68,378 GHz. A degenerescência dos estados $39S_{1/2}39P_{3/2}$ e $39P_{3/2}39S_{1/2}$

são levantadas para qualquer separação finita *R* devido à interação dipolo-dipolo entre os átomos.....112

5.20 Sinal de elétrons depois de 3,5μs após a excitação dos átomos nos estados $39S_{1/2}$ com (linha sólida) e sem (linha pontilhada) o pulso de microondas. Sem o pulso de microondas somente o sinal dos estados $39S_{1/2}$ é observado. Com o pulso de microondas um sinal de plasma e redistribuição da população de Rydberg é evidente.....113

5.21 Sinal de plasma em função da freqüência de microondas. O pulso de microondas tem duração de 500 ns e o tempo de detecção de 3,5 μs. O sinal de plasma somente é observado para baixas freqüências (63,368 GHz) da ressonância da transição $39S_{1/2}$ -$39P_{3/2}$, correspondendo a um potencial atrativo.....114

5.22 Sinal de íons depois de 1 μs de atraso apos a excitação do estado $39S_{1/2}$. A duração do pulso de microondas é de 500 ns, a freqüência é fixada para o vermelho da transição de ressonância $39S_{1/2}$-$39P_{3/2}$. Para este tempo de atraso existe um sinal de íons livre como mostra a figura, porem não há plasma, o qual é verificado ao olharmos para o sinal de elétrons.....115

5.23 Sinal de íons livres em função da freqüência de microondas. Novamente o pulso de microondas é 500ns e o tempo de detecção é 1μs. O sinal de íons livres é observado para baixas freqüências de ressonância da transição $39S_{1/2}$-$39P_{3/2}$.....116

5.24 Sinal dos íons livres como função da freqüência de microondas. Para grandes dessintonias o sinal apresenta uma dependência $1/\Delta^{1,05\pm0.05}$ 119

Lista de Tabelas

2.1 Lei de escala das propriedades dos átomos de Rydberg em função de número quântico efetivo n^* [17].....40

4.1 Campo elétrico ressonante para interações de dipolo-dipolo $nP_{3/2} + nP_{3/2} \rightarrow nS_{1/2} + (n+1)S_{1/2}$, $*|m_j|$ corresponde a posição de ressonância.....73

4.2 Contendo valores dos níveis de energia e tempo de vida dos respectivos estados: $32S_{1/2}$, $32P_{3/2}$ e $33P_{3/2}$.....77

4.3 Valores dos acoplamentos entre os diferentes estados; $32S_{1/2}$, $32P_{3/2}$ e $33P_{3/2}$.....78

5.1 Contendo valores dos níveis de energia e tempo de vida dos respectivos estados: $32S_{1/2}$, $32P_{3/2}$ e $31P_{3/2}$.....95

5.2 Valores dos acoplamentos entre os diferentes estados $32S_{1/2}$, $32P_{3/2}$ e $31P_{3/2}$.....96

Resumo

Processos colisionais envolvendo transferência de energia têm sido intensivamente investigados em amostras de átomos de Rydberg frios nos últimos anos. Alguns grupos de pesquisa têm interpretado tais processos utilizando um modelo de muitos corpos; nosso grupo tem explicado tais processos, considerando a interação de dois corpos em um potencial de ultralongo alcance e o movimento sob a ação de um potencial. Nesta tese nós investigamos tais processos de colisão envolvendo átomos de Rydberg frios, produzidos em uma armadilha magneto-óptica. A investigação da evolução temporal de estados de Rydberg produzidos por colisões para diferentes densidades atômicas nos permite demonstrar que o processo binário é dominante. Além disso, mostramos que a radiação de corpo negro não pode ser desprezada nestes experimentos. Finalmente, sugerimos melhorias para um modelo semi-clássico de dinâmica colisional proposto por nosso grupo.

Abstract

Collisional processes involving energy transfer have been intensively investigated in samples of cold Rydberg atoms in the last years. Some research groups have interpreted such processes using a many body model; on the other hand our group has explained such processes considering a two body interaction in an ultralong range potential and the atomic motion under the influence of such potential. In this work, we have investigated such atomic collisions involving cold Rydberg atoms, produced in a magneto-optical trap. The time evolution study of the Rydberg states produced by collisions for different atomic densities has shown us that the binary process is dominant in such system. Beyond that, we have shown that the radiation of black body cannot be neglected in these experiments. Finally, we suggest improvements for the semi-classical collissional dynamic model proposed by our group.

Capítulo 1.

Introdução: Uma Visão Geral

A história do desenvolvimento da física e química como ciência constituiu um palco extraordinário e fascinante do conhecimento humano. Nenhuma descoberta científica provocou um impacto tão grande quanto a da natureza atômica da matéria. Desde a proposta de sua existência por Demócrito na Grécia Antiga, o átomo tem sido um dos assuntos mais estudados e o interesse pelo seu conhecimento permanece sempre atual [1]. A descoberta da pressão de luz como um fenômeno físico tem uma longa e interessante história. Kepler e Newton presumiram que a luz exerceria pressão sobre corpos materiais. Bertoli deduziu a existência da pressão de luz das considerações termodinâmicas. Maxwell em 1873 calculou a pressão de radiação usando a teoria do campo eletromagnético. A primeira medida experimental da força exercida pela luz sob uma placa metálica fina foi realizada por Lebedev em 1901. Em seguida, um experimento similar foi feito por Nichols e Hull. Portanto, estes estudos têm demonstrado que pressão de luz pode ser detectada em laboratórios. Um importante passo nesta direção foi tomado por Lebedev quando ele tentou medir a pressão da radiação sobre um gás de moléculas ressonantes [2]. A origem física da ação da radiação é devido ao processo de troca de energia e momento entre campos e

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

partículas. Este processo de troca é fundamental na consideração do equilíbrio termodinâmico da radiação com a matéria como foi elucidado por Einstein [3,4].

Hoje já conseguimos obter imagens de átomos individuais e já estudamos até subpartículas que os compõem. Mas para entender a estrutura dos átomos e moléculas é preciso saber como as partículas subatômicas se movem sob a ação das forças externas e internas. Pensando desta maneira o Homem vem desenvolvendo e aprimorando técnicas que possibilitam o domínio sobre a entidade atômica. Portanto, atualmente vários laboratórios têm proposto e demonstrado novas técnicas que possibilitam o controle sobre a entidade atômica como, também, utilizado átomos para a realização de vários estudos. Veremos a seguir como foi o desenvolvimento e a luta dos cientistas para obterem o controle absoluto dos átomos.

A primeira idéia de utilizar a radiação eletromagnética para exercer pressão sobre o átomo surgiu em 1933 por Frisch, utilizando a deflexão de um feixe atômico de sódio [5]. Mas a primeira proposta para se usar laser para defletir feixes atômicos surgiu somente na década de 70 por A. Ashkin [6]; com o desenvolvimento de lasers sintonizáveis novos avanços foram possíveis. Em 1979 R. J. Cook baseou-se no teorema de Ehrenfest e nas equações ópticas de Bloch para deduz a expressão para a pressão de radiação sobre o sistema atômico incluindo efeitos de emissão espontânea e interações de dipolo induzido [7].

Nos últimos anos tem sido grande o interesse no estudo da obtenção de amostras de átomos frios e de altas densidades. Uma das formas de obter estas amostras é através das técnicas de desaceleração de feixes atômicos ou utilizando a técnica de aprisionamento de átomos neutros usando armadilhas magneto-ópticas (AMO). Em 1987, existiam duas formas de aprisionamento de átomos neutros. Uma delas emprega a força magnética atuante no átomo quando ele esta em uma região de

campo magnético não homogêneo e a outra faz da força de pressão de radiação para confiná-lo [8]. Basicamente, a idéia que suporta a armadilha magnética é o fato que há estados fundamentais atômicos com spins eletrônicos desemparelhados tem energia que aumenta com o campo magnético, produzindo assim uma força restauradora sobre eles, na direção de mínimo de campo. A primeira armadilha óptica foi proposta por Ashkin em 1978 e consiste de dois lasers contrapropagantes focalizados. Nesta configuração existe uma força restauradora transversal devido ao gradiente do campo de radiação na direção radial (força induzida) [9].

Mas a primeira observação de átomos aprisionados opticamente foi realizada em 1985 por S. Chu [10] em átomos de sódio (Na). A configuração experimental utilizada constitui-se de um arranjo tridimensional de feixes contrapropagantes sintonizados abaixo da freqüência de ressonância. De acordo com a Hänsch e Schawlow [11] isto causa uma força oposta à velocidade do átomo, ou seja, uma força viscosa. Desta forma esta técnica é denominada de melaço óptico. Na verdade o melaço óptico não é uma verdadeira armadilha, pois não existe força restauradora presente e o tempo de confinamento dos átomos é de apenas 100 ms, que é muito menor que o obtido pela técnica de aprisionamento usando a armadilha magneto-óptica que discutiremos a seguir. Em 1986, S. Chu e colaboradores [12] também aprisionaram átomos de Na utilizando a força de dipolo ou induzida. Os átomos foram inicialmente resfriados através da técnica de melaço óptico a uma temperatura inferior a 1 mK e depois capturados em uma armadilha criada por um laser de perfil gaussiano extremamente focalizado e sintonizado bem abaixo da freqüência de ressonância. Este trabalho mostrou a proposta de Ashkin sobre a possibilidade de se obter armadilhas ópticas usando força de dipolo.

A primeira armadilha magneto-óptica foi construída por E. Raab em 1987 [13]. A configuração experimental consiste basicamente de três feixes lasers contrapropagantes nas direções x, y e z, com sintonia abaixo da ressonância e de um campo magnético produzido por um quadrupolo esferoidal. Tanto no trabalho de S. Chu quanto no de E. Raab a armadilha foi carregada com átomos desacelerados usando a técnica de varredura de freqüência [14]. A primeira armadilha magneto-óptica na qual os átomos foram aprisionados diretamente do vapor presente em uma célula, isto é, sem a necessidade do estágio de desaceleração foi feita por Monroe para átomos de Césio (Cs) [15].

Paralelamente a este trabalho, Dalibard [16] e Cohen [17] propõem um novo mecanismo de resfriamento via gradiente de polarização para explicar os resultados experimentais obtidos até então. Os estudos efetuados nestas amostras de átomos confinados referem-se a uma configuração geométrica dos seis feixes perfeitamente alinhados dois a dois. A distribuição espacial de átomos aprisionados observada assemelha-se a uma nuvem quase esférica. Estes estudos tratam do comportamento dinâmico dos átomos em relação a vários parâmetros inerentes ao aprisionamento como gradiente de campo magnético, intensidade do campo de radiação e dessintonia entre a freqüência do feixe de aprisionamento e a freqüência atômica.

Portanto, as técnicas mais poderosas atualmente para o controle da entidade atômica envolvem a utilização da pressão de radiação como agente externo capaz de exercer força sobre o átomo. Através da pressão da radiação, átomos têm sido aprisionados e resfriados a temperatura da ordem de 1 mK (frios) ou 1 μK (ultrafrios). Este regime de temperatura é de grande interesse tanto experimentalmente quanto teoricamente, uma vez que átomos frios e ultrafrios são

empregados em estudos de interações colisionais e de espectroscopia fotoassociativa, metrologia de tempo e freqüência, redes ópticas, etc [18].

Apesar da grande evolução nas técnicas de resfriamento a laser, esta técnica aplica-se somente a uma classe de átomos, os alcalinos (hidrogenóides), gases nobres e alcalinos terrosos, por apresentarem transições fechadas. No caso de outros átomos (e/ou moléculas) existem canais de decaimento múltiplos para outros níveis tornando a técnica inviável de ser implementada. Por apresentarem uma estrutura interna mais complexa que os átomos, aprisionar moléculas tem sido um grande desafio para alguns grupos atuais, com o objetivo de estudar sua estrutura vibracional, rotacional, rovibracionais, e etc. Esses grupos têm desenvolvido varias técnicas obtendo resultados inéditos e satisfatórios, mas nas quais são limitadas quanto à temperatura e densidade dessas amostras.

Uma das mais notáveis aplicações de uma armadilha magneto-óptica é o estudo de colisões atômicas. A vantagem de estudar processos colisionais em armadilhas magneto-ópticas, é que, trabalhando com átomos frios, há tempo suficiente para que ocorra uma colisão e posteriormente troca de energia entre os pares. Isto é devido à baixa velocidade dos átomos (~ 30 cm/s), sendo então possível observar a evolução temporal do processo colisional por longos períodos. Ao contrário, nas colisões térmicas por serem muito rápidas não há como estudá-las em detalhes. Umas das principais questões que motivou o estudo em colisões ultrafrias foi à necessidade de entender quais os mecanismos envolvidos durante o processo colisional que induziam perdas de átomos da armadilha. Perdas por colisão limitam a densidade de átomos aprisionados e o tempo de confinamento nas armadilhas [19, 20, 21]. Na presença de um laser de aprisionamento podem ocorrer colisões com um átomo no estado fundamental e outro no estado excitado, isto em decorrência que um

destes átomos poderia absorver ou emitir um fóton do laser de aprisionamento. Atualmente um dos grandes interesses em estudar colisões atômicas está voltado à produção de moléculas diatômicas pelo processo de fotoassociação [22, 23, 24] em uma AMO, ou obtenção de moléculas triatômicas [25].

O estudo de átomos de Rydberg teve um grande avanço a partir do desenvolvimento dos lasers de corantes sintonizáveis, isto em decorrência que estes lasers podem ser sintonizados para excitar o átomo a um nível específico (número quântico principal: n). Atualmente vários experimentos tem sido realizados utilizando armadilhas magneto-ópticas como fontes para estudar átomos de Rydberg, levando a uma maior precisão nos resultados obtidos. Existem, portanto, vários interesses em estudar átomos de Rydberg, dentre os quais podemos citar: a) Os efeitos da radiação nestes átomos são exacerbados em relação aos provenientes da observação de outros átomos nos estados mais baixos face aos grandes elementos de matriz para as transições para os níveis vizinhos, assim os efeitos de radiação induzida superam os da emissão espontânea. Os átomos de Rydberg são sensíveis à radiação de corpo negro o que os tornam importantíssimos para estudar a interação da radiação com a matéria [26]. Basta lembrar que para n da ordem de 35 a separação entre os estado S e P é da ordem de 3,15 cm^{-1}, e o fóton de KT = 208,54 cm^{-1}. b) Devido ao seu tamanho, as interações de colisões tornam-se muito importantes, pois sua seção de choque geométrica cresce com n^4. c) A energia de ligação do elétron do caroço iônico é muito pequena, então, o átomo de Rydberg é fortemente influenciado por campos externos elétricos ou magnéticos [27].

Particularmente eles têm uma grande importância em astrofísica [28]. No espaço interestelar, os níveis de Rydberg são formados por recombinação radiativa, e esse processo produz populações significantes de átomos nos níveis em um grande

intervalo de n. Mas durante algum tempo (meados da década de cinqüenta até início dos anos setenta, do século XX) pode-se dizer que o interesse por átomos de Rydberg decresceu, voltando a ter notoriedade quando ficou claro que eles deveriam ter grande importância em sistemas físicos. Mas provavelmente o que deu grande impulso à volta do interesse no estudo de estados de Rydberg, foi o surgimento dos lasers sintonizáveis de corante. Com estes lasers e um aparato experimental relativamente simples, é possível acessar-se estados individuais de Rydberg.

Nos últimos anos o desenvolvimento de técnicas de resfriamento e aprisionamento de átomos utilizando laser tem sido aplicado em uma vasta gama de experimentos. Investigações em átomos de Rydberg ultrafrios têm aberto um novo regime de experimentos e aplicações surpreendentes. A baixas temperaturas a magnitude de varias propriedades de átomos de Rydberg fazem deles excelente candidatos para estudar plasmas ultrafrios, colisões atômicas, medidas de tempo de vida [29,30]. Há propostas teóricas tais como propriedades de transportes de gases dopados com íons [31], computação quântica [32] e a criação de moléculas trilobites de Rydberg [33]. Devemos ressaltar aqui que esta moléculas trilobites levam este nome devido ao fato de sua função de onda se assemelhar ao animal pré-histórico já extinto. Átomos de Rydberg possuem propriedades bastante incomuns: por exemplo, eles podem ser mais de 10 mil vezes maior que um átomo no estado fundamental; sua vida média pode vir a ser maior que 1 ms [34]. Os átomos de Rydberg possuem uma série de aplicações. Por serem gigantes possui um grande momento de dipolo, o que permite que os átomos sejam utilizados para estudos de interações atômicas com campos eletromagnéticos. Quando se excita a um alto número quântico (n), o elétron passa a ter um comportamento clássico, e isto permite explorar o princípio da correspondência. Podemos destacar o forte acoplamento entre os átomos de Rydberg

e campos eletromagnéticos externos. Isto, associado ao longo tempo de vida, torna-os ideais para realização de estudos espectroscópicos precisos.

Além disso, os átomos de Rydberg podem ser usados para se estudar eletrodinâmica quântica de cavidade, estados não-clássicos do campo eletromagnético. As primeiras evidências do estudo de átomos de Rydberg utilizando átomos frios surgiram em 1993 [35] utilizando o Lítio em um feixe atômico, posteriormente temos em 1998 o Césio [36] e Rubídio [37], utilizando uma armadilha magneto-óptica (AMO). Com o desenvolvimento destas técnicas de aprisionamento podemos obter uma alta precisão na medida de tempo de vida destes átomos de Rydberg porque as técnicas convencionais usadas não permitiam obter uma precisão desejada a se comparar com cálculos até então realizados. O grupo de Óptica (IFSC/USP) deu uma grande contribuição ao medir o tempo de vida para alguns estados do átomo de ^{85}Rb [29,30], como também foram realizados experimentos envolvendo mudança de estado eletrônico e efeitos de colisão ressonantes com transferência de energia [38].

Experimentos pioneiros sobre colisões ressonantes em gases foram realizados por Anderson [39] e Mourachko [40]. Estes trabalhos eram motivados pelo desejo de entender experimentos e subseqüentemente o trabalho de Lowell e colaboradores [41] realçando os aspectos dinâmicos das colisões ressoantes em sistemas de muitos corpos. Segundo Anderson e colaboradores, as colisões ressonantes dipolo-dipolo dependem da temperatura e ocorrem via colisões de dois corpos a 300 K. Ao contrario que para 300 μK interagem via muitos corpos. Mourachko [42] trabalhando com átomos de Cs a uma temperatura de 100μK e densidade $10^{8\text{-}10}$ cm^{-3}, propõem que os átomos se comportam como um gás congelado, mas há uma relação entre dois

e três corpos e isto pode ser visto na largura e forma da linha espectral proveniente da transferência ressonante de energia devido às múltiplas interações simultâneas.

Nos últimos anos nosso grupo tem realizado experimentos envolvendo processos colisionais com transferência de energia ressonante na presença e na ausência de campo elétrico estático [43]. Variando o atraso entre a excitação óptica e o pulso de detecção elétrica, nós observamos a evolução temporal da população do estado proveniente da colisão, o qual é proporcional à densidade atômica ao quadrado indicando que trata-se de um processo de dois corpos e não de muitos corpos, como até então proposto por outros grupos.

Mas as interpretações quanto às colisões ressonantes ocorrerem via dois ou muitos corpos não está bem esclarecida, ou seja, há controversas entre grupos. Contradições estas que surgem quando alguns grupos tratam o gás de Rydberg como congelado, ou seja, estático e que interagem via muitos corpos, enquanto outros grupos acreditam que os átomos se movem sob a ação de um potencial atrativo e podem interagir via dois corpos. Portanto, a principio nós podemos pensar que existem contradições entre esses dois modelos já apresentados na literatura.

Neste trabalho, entretanto, mostraremos que esta contradição não é apenas aparente, ou seja, a evolução temporal dos estados provenientes das colisões para diferentes densidades nos permite entender a importância das interações entres dois corpos e da radiação do corpo negro, dominantes nos processos de colisões por transferência de energia. Nossos resultados mostram que para curtos tempos (menor que 20 microssegundos) de interação (nos referimos a curto tempo ou grande tempo, entre o intervalo de excitarmos a amostra e detectarmos íons/elétrons) a transferência de energia depende quadraticamente da densidade atômica. No caso para grandes tempos de colisão (maior que 20 microssegundos) há um desvio da curva quadrática

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

para linear, o qual pode ser explicada pela influência da radiação do corpo negro que causa transferência de população entre os níveis atômicos.

O principal objetivo deste trabalho é elucidar o caráter físico dos processos de colisões frias que ocorrem em átomos de Rydberg obtidos a partir de átomos aprisionados em uma armadilha magneto-óptica. Experimentalmente nós estudaremos os processos colisionais em átomos de rubídio (^{85}Rb). Os estados de Rydberg podem ser obtidos utilizando um laser de corante que irá excitá-los para os respectivos estados selecionados. Após a excitação, nós podemos detectar íons/elétrons utilizando a técnica de campo ionizante. Desta forma estudaremos a dinâmica dos processos colisionais, ou seja, observaremos a evolução das populações dos átomos colidindo como também o resultado proveniente desta colisão. Nós utilizaremos um modelo semi-clássico desenvolvido pelo nosso grupo para interpretar os resultados experimentais obtidos. Mostraremos que existem discordâncias entre este modelo e os resultados obtidos e explicaremos isso baseado na simplicidade do mesmo. Além disso, proporemos melhorias nesse modelo. A seguir, resumiremos em detalhes o conteúdo de cada Capítulo desta tese, deixando de uma forma mais clara o que abordaremos após esta breve introdução.

No Capítulo II faremos uma introdução dos fundamentos teóricos sobre átomos de Rydberg. Descreveremos o tratamento adotado por alguns grupos para explicar os efeitos de colisões em uma AMO. E por último nós apresentaremos um modelo teórico que descreve a interação de dois corpos durante a colisão. No Capítulo III expomos a montagem experimental com todos os detalhes, desde a realização do aprisionamento, excitação e posteriormente detecção.

No Capítulo IV apresentaremos os resultados provenientes das colisões: $\mathrm{Rb}(n)P_{3/2} + \mathrm{Rb}(n)P_{3/2} \rightarrow \mathrm{Rb}(n)S_{1/2} + \mathrm{Rb}(n+1)S_{1/2}$ controladas por campo elétrico.

Estudaremos a evolução das populações $nS_{1/2}$ provenientes das colisões para obtermos um perfil da probabilidade de ocorrer transição em função do respectivo campo elétrico aplicado. Nesses resultados mostraremos a influência da radiação de corpo negro e um método para remover seu efeito. Em seguida, os resultados são comparados com o modelo descrito no Capítulo II. Discutiremos as discordâncias e propomos correções ao modelo. A seguir, no Capítulo V estudaremos as colisões na ausência de campo elétrico; Rb$(n)S_{1/2}$ + Rb$(n)S_{1/2}$ → Rb$(n)P_J$ + Rb$(n-1)P_J$; e Rb$(n)D_J$ + Rb$(n)D_J$ → $(n-2)k$ + Rb$(n+2)P_J$ (onde k representa os estados Hidrogenóides). Nestas colisões monitoramos apenas as populações Rb$(n)P_J$ e Rb$(n+2)P_J$ proveniente das colisões. Obteremos desta forma a probabilidade de ocorrer transição por transferência de energia em função dos números quânticos $\boldsymbol{n}$. Mostraremos que inicialmente a população nos estados Rb$(n)P_J$ e Rb$(n+2)P_J$ é proveniente de colisões de dois corpos para curtos tempos, mas que, para longos tempos a radiação de corpo negro passa a contribuir também. Proporemos como estas contribuições poderão ser separadas em experimentos futuros. Neste Capítulo ainda, aplicamos este modelo semi-clássico em um experimento realizado por Li e colaboradores [44]. O modelo semi-clássico foi desenvolvido por Zanon [45] e posteriormente utilizado por de A L. de Oliveira [46]. Nós adaptamos este modelo para as condições do experimento descrita na referência [44] e observamos que o modelo proposto descreve bem os resultados obtidos nesse trabalho.

Finalmente, o Capítulo VII é destinado às conclusões acerca deste trabalho e às discussões de futuros experimentos que poderão ser realizados a partir do estudo de átomos de Rydberg.

Bibliografia

[1] Bassalo, José Maria Filardo, *Crônicas da Física.* Belém, Editora e Gráfica Universidade Federal do Pará, (1990).

[2] A. P. Kazantsev., G. I. Surdutovich , V. P Yukovlev , *Mechanics Action of Light on Atoms,* Copyright by Word Scientific Publishing. Co. Pte. Ltd. (1990).

[3] Eisberg, Robert, *Física Quântica: átomos, moléculas, núcleos e partículas.* Robert Eisberg e Roberto Resnick; tradução de Paulo Costa Ribeiro. Rio de Janeiro, Editora Campus, (1979).

[4] Lopes, Jose Leite, *Do átomo pré-socrático as partículas elementares: a estrutura quântica da matéria*, Rio de Janeiro: Editora UFRJ, Academia Brasileira de Ciência, Editora Arca, (1992).

[5] O. Frisch, F. Zeit, Phys., **86**, 42 (1933).

[6] A. Ashkin, Phys. Rev. Lett. **54**,2596 (1978).

[7] R. J. Cook, Phys. Rev. A **20**, 224–228 (1979).

[8] C. Cohen Tannoudji, *Atoms in Electromagnetic Fields*, Vol.1, Word Scientific Publisch (1994)

[9] A. Ashkin, Phys. Rev. Lett. **40**, 729–732 (1978).

[10] S. Chu, L. Hollberg, J. Bjorkholm, A. Cable and A. Ashkin, Phys. Rev. Lett. **55**, 48 (1985).

[11] T. Hänsh and Schawlow, Opt. Commun, **13**, 68 (1975).

[12] S. Chu, J. Bjorkholm, A. Ashkin and A. Cable, Phys. Rev. Lett. **57**, 314 (1986).

[13] E. Raab, M. Prentiss, A. Cable, S. Schu and Pritchard, Phys. Rev. Lett, **59**, 2632 (1987).

[14] W. Ertmer, R. Blatt, J. Hall and M. Zhu, Phy. Rev. Lett. **67**, 46 (1985).

[15] C. Monroe, W. Swann, H. Robinson and C. Wieman, Phys. Rev. Lett. **65**, 1571 (1990).

[16] J. Dalibard and C. Cohen Tannoudji, J. Opt. Soc. Am B. **2**, 1707 (1989).

[17] C. Cohen-Tannoudji and W. D. Phyllips, Phys. Today **43**, (1990).

[18] H. J. Metcaf, P.V der Straten, *Laser Cooling and Trapping.* Springer Verlag New York, (1999).

[19] P S. Julienne, A. M. Smith and K. Burnet, Adv. Atomic. Molec. Opte. Phys. **30**, 141 (1993).

[20] P. S. Julienne, J. Vigué, Phys. Rev. A. **44**, 4464 (1991).

[21] A. Gallagher and D. E. Pritchard, Phys. Rev. Lett. **63**, 957 (1989).

[22] C. Gabbanini, A. Fioretti, A. Lucchesini, S. Gozzini and M. Mazzoni, Phys. Rev. Lett., **82**, 2814 (2000).

[23] A. Nikolov, E. E .Eyler, X. Wang, J. Li., H. Wang, W. Stwalley and O. Gould, Phys. Rev. Lett. **82**, 703 (1999).

[24] F. Fatemi., Jones, P. K. Lett and E. Tiesinga, Phys. Rev.A. **66**, 053401 (2002).

[25] P. Blythe, B. Roth, U. Frohlich, H. Wenz and S. Shiller, Phys. Rev. Lett. **95**, 183002 (2005).

[26] T. F. Gallagher, Rydberg Atoms, Cambridge University Press, Cambridge (1994).

[27] J. A. C. Gallas, G. Leuchs, H. Walther and H. Figger, *Advances in Atomic and Molecular Physics,* vol 20, pp 413 – Academic Press (1985).

[28] A. Dalgarno, *Rydberg States of Atoms and Molecules*, Cambridge University Press, Cambridge (1983).

[29] K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira, R. A. D. S. Zanon, V. S. Bagnato and L. G. Marcassa, Opt. Commum. **184**, 385 (2000).

[30] A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato and L. G. Marcassa, Phys. Rev. Lett. **90**, 143002 (2003).

[31] R. Côté and A. Dalgarno, Phys,Rev. A. **62**, 012709 (2000).

[32] D. Jaksch, J. J. Cirac, P. Zoller, S. L. Rolston, R. Côté and M. D. Lukin, Phys. Rev. Lett. **85**, 2208 (2000).

[33] C. H. Greene, A. S. Dickinson and H. R. Sadeghpour, Phys. Rev. Lett. **85**, 2458 (2000).

[34] V. S .Bagnato, Apostila: *Introdução à Física Atômica e Molecular*, IFSC/USP. (2000).

[35] M. Weidmuller, C. Gabbanini, J Hare, M. Gross, S Haroche, Opt. Commun. 101, 342 (1993).

[36] I. Mouracjko, D. Comparat, F. De Tomasi, A. Fioreti, P. Nosbaum, V. M. Akulin and P. Pilleti, Phys. Rev. Lett. **80**, 253 (1998).

[37] W. R. Anderson, J. L. Veale and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **80**, 249 (1998).

[38] R. A. D. S. Zanon, K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira and L. G. Marcassa, Phys. Rev. A, **65**, 023405 (2002).

[39] W. R. Anderson, J. R Veale and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **80**, 249 (1998).

[40] I. Mourachko, D. Comparat, F. De Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum, V.M. Akulin and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **80**,253 (1998).

[41] J. R. Lowell, Dipolo-Dipolo *Interaction in a Frozen Rydberg Gas*, PhD Thesis, University of Virginia, (1998).

[42] I. Mourachko, W. Li and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **80**, 253 (1998).

[43] R. A. D. S. Zanon, K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira and L. G. Marcassa, Phys. Rev. A **65**, 023405 (2002); A. L. De Oliveira, M. W. Mancini,V. S. Bagnato and L. G. Marcassa, Phys. Rev. Lett. **90**, 143002 (2003).

[44] W. Li, P. J. Tanner and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **94**, 173001 (2005).

[45] R. A .D. S, *Estudo de Colisões Frias Envolvendo Mudança de Estado Eletrônico em* ^{85}Rb, Tese de Doutorado, IQSC (2000).

[46] A L. De Oliveira, *Estudos em Átomos de Rydberg Frios*, Tese de Doutorado, UFSCAR, (2001).

Capítulo 2.

Aspectos Teóricos e experimentais

2.1 Introdução

O estudo sistemático das raias (linhas) espectrais conhecido como espectroscopia, foi iniciado pelo físico alemão Joseph Von Fraunhofer em 1814, no qual descreveu suas observações sobre a presença de linhas escuras no espectro solar, cujas oito principais ele as distinguiu com letras. Dentre as quais, destacam-se: A (vermelho escuro), D (amarelo claro) e H (violeta) [1]. Ao construir uma rede de difração em 1819, Fraunhofer começou a medir o comprimento de onda das raias espectrais solares (mais tarde conhecidas como raias de Fraunhofer) e identificá-las com as letras do alfabeto, como fizera anteriormente. Nas mais de 600 linhas que Fraunhofer estudou, ele observou que suas posições eram constantes para o mesmo espectro de um dado elemento químico, quaisquer que fossem as fontes de luz utilizadas para a obtenção do espectro, isto é, luz solar direta do Sol, ou refletida pela Lua ou pelos planetas, por um gás, ou por um metal aquecido. Desse modo, concluiu que cada elemento químico é caracterizado por um espectro, como se fosse uma verdadeira impressão digital [2]. Hoje, a difração da luz proveniente de fontes bem afastadas de uma rede de difração, é chamada de difração de Fraunhofer [3]. Uma

fórmula empírica para determinar as linhas espectrais do hidrogênio (*H*) foi obtida pelo físico e matemático suíço Johann Jakob Balmer em 1885. Sua expressão é a seguinte (em milímetros - mm) [4]:

$$\lambda = b\frac{n^2}{n^2 - 4} \tag{2.1}$$

onde b é uma constante e n representa o número quântico principal do estado superior da transição, partindo de $n = 3$ para níveis de energia bem mais altos. Com essa fórmula, Balmer chegou a calcular a posição de 19 linhas do Hidrogênio, constituindo, assim, o que passou a ser conhecido como série de Balmer. Em 1890 o físico sueco Johannes Robert Rydberg expressou a fórmula de Balmer em termos do número de ondas (inverso do comprimento de onda: $\bar{\nu} = 1/\lambda$) e observou, ainda, que as posições das linhas espectrais de qualquer elemento químico apresentavam em seus cálculos um fator numérico constante, fator esse que a partir daí ficou conhecido como a constante de Rydberg (R). Esse resultado ficou conhecido como a fórmula de Rydberg:

$$\bar{\nu} = \frac{1}{\lambda} = \frac{1}{b} - \frac{4}{bn^2} = \bar{\nu}_\infty - \frac{R}{n^2} \tag{2.2}$$

Em 1896, Rydberg e, independentemente, em 1897 o físico germano-inglês Arthur Schuster mostraram a convergência das freqüências de diferentes séries espectrais da mesma substância [5]. Esse resultado ficou conhecido como a lei de Rydberg-Schuster e, na atual notação, ela apresenta o seguinte aspecto (para *H*): $1/\lambda = R_H(1/4 - 1/n^2)$, com R = 1,0967757x10^5 cm^{-1}. A constante R, denominada a constante de Rybderg (ou simplesmente de Rydberg), aparece em todas as séries espectrais de um mesmo elemento e varia ligeiramente, de maneira regular, de elemento para elemento. Na época de Balmer e Rydberg, não se entendia porque o

espectro do hidrogênio se ajusta tão bem a essas expressões relativamente simples. Quem deu o primeiro passo para desvendar esse enigma foi o dinamarquês Niels Bohr em 1913, quando propôs um modelo de átomo de hidrogênio que combinava os trabalhos de Planck, de Einstein e de Rutherford e que previa os espectros observados. Com notável sucesso no cálculo dos comprimentos de onda das linhas do espectro atômico conhecido do hidrogênio e na previsão de novas linhas (que foram encontradas posteriormente) nos espectros de infravermelho e de ultravioleta. Bohr admitiu que o elétron de hidrogênio se movia sob a influência da atração coulombiana entre ele e o núcleo positivo, conforme a mecânica clássica, em uma órbita circular ou elíptica, com um centro atrativo num dos focos. Bohr modificou as leis do eletromagnetismo admitindo como postulado que o elétron só poderia se mover em certas órbitas, não irradiantes, esta idéia é conhecido como o primeiro postulado de Bohr [6].

2.2 Aspectos Teóricos dos Átomos de Rydberg.

Átomos de Rydberg é uma denominação genérica para indicar qualquer átomo que possua um elétron num estado quântico elevado, ou seja, são sistemas excitados em que o elétron é promovido a um nível com número quântico principal n muito grande. Não existe definição de quão grande n deve ser. Segundo Daniel Kleppner se $n > 1$ já é um estado de Rydberg [7]. Sabemos que elétrons somente podem orbitar átomos que possuam determinados valores de energia (a energia é quantizada). Por exemplo, para um átomo de hidrogênio somente teremos órbitas eletrônicas estáveis para valores da energia dados por $E_n = -1/2n^2$ em unidades atômicas (1ua = Hartree). Cada átomo consiste em um núcleo com carga elétrica +Z (i.e., a carga total dos prótons, cada um com uma carga +1) envolta por Z elétrons,

cada um com carga -1. Se o elétron mais externo de um átomo que não seja o hidrogênio for promovido para um nível de energia muito alto, ele passará a mover-se numa órbita bastante afastada das órbitas dos outros elétrons. Portanto, para esse elétron excitado tudo se passa como se ele fosse atraído por um caroço iônico de carga +1 (formado pelo núcleo original mais todos os elétrons internos), que é a carga de um núcleo de hidrogênio.

Desde que o elétron excitado não passe perto do caroço (o caroço composto do núcleo e dos demais elétrons), seu movimento será o mesmo que num átomo de hidrogênio de um ponto de vista clássico [8,9]. Portanto, a física dos átomos de Rydberg é essencialmente a física do átomo de hidrogênio, porém, em alguns casos com algumas restrições. Posteriormente no discorrer desta tese nós retomaremos a discutir sobre semelhanças e diferenças entre estes átomos, veremos também as relações entre os níveis de energias e funções de ondas do átomo de hidrogênio e outros alcalinos.

O grande interesse nestes átomos provém de uma série de propriedades não usuais que esses átomos possuem. Em primeiro lugar, note que eles são imensos; o valor esperado da posição dos elétrons de Rydberg é proporcional a n^2. Já se observaram átomos de Rydberg cujo diâmetro se aproxima de centésimos de milímetros, o que é 100.000 vezes maior que o diâmetro do mesmo átomo no estado fundamental. Normalmente apresentam um tamanho de milhares de ângstrons, tamanho comparável às bactérias e outros microcorpos cuja dimensão típica já saíram da escala atômica [10]. Na escala de fenômenos atômicos os átomos de Rydberg são "quase eternos"; tempos de vida radiativos de até milésimos de segundo são comuns. Muitas das propriedades e leis para átomos de Rydberg também podem ser entendidas por um modelo clássico [11]:

1- A lei para o tempo de órbita, T_K dos estados de Rydberg, $T_K \alpha\ n^3$, segue diretamente a terceira lei de Kepler, $T^2_K / a^3 = const.$, com um semi-eixo maior proporcional a n^2.

2- A baixa seção de choque de fotoionização pode ser explicada pelo fato de que o elétron gasta a maior parte do seu tempo fora do caroço, onde ele está quase livre. Um pulso de laser de multi-ciclo não pode transferir energia para um elétron livre. O elétron agita-se no campo do laser sem transferência de energia. Somente durante um curto intervalo de tempo ele gasta próximo do caroço onde está suscetível ao pulso de laser. O tempo que o elétron gasta ao redor do caroço é independente de n. Isto conduz para um n^{-3} na seção de choque de fotoexcitação. A mesma razão explica o n^{-3} da seção de choque de um átomo do estado de Rydberg com número quântico principal n.

3- O mesmo fato explica o longo tempo de vida de altos estados de Rydberg como decaimento radioativo, isto é, emissão de um fóton pode ocorrer próximo do caroço.

4- O espaçamento de energia entre dois estados de Rydberg vizinhos n e $n+1$, o qual é n^{-3} (u.a), é a razão da alta seção de choque para transições $n \rightarrow n + 1$ em átomos de Rydberg.

A partir do modelo semi-clássico de *Bohr*, temos que, como o número quântico principal é elevado, o elétron opticamente ativo está muito afastado do núcleo e dos demais elétrons. Assim, do ponto de vista deste elétron, o núcleo de carga Z é blindado por Z-1 elétrons como explicamos anteriormente. Conseqüentemente, temos um potencial semelhante ao do átomo de hidrogênio. A energia para um átomo de hidrogênio pode ser obtida utilizando a equação de Schrodinger independente do tempo:

$$\left(-\frac{\nabla^2}{2}-\frac{1}{r}\right)\psi = E\psi\,, \tag{2.3}$$

a qual pode ser separada em um parte angular e uma parte radial e resolvida analiticamente para nos fornecer a bem conhecida solução [12]

$$\psi^{H}_{nml}(\theta,\phi,r) = \mathrm{Y}_{lm}(\theta,\phi)\frac{f(E_n,l,r)}{r} \tag{2.4}$$

com autovalores,

$$E_n = -\frac{1}{2n^2}\,. \tag{2.5}$$

Aqui Y_{lm} são os harmônicos esféricos e $f(E,l,m)$ são as funções angulares de Coulomb. A energia de uma estado de Rydberg hidrogenóide depende somente de n, tal que estados com iguais n, porém com diferentes l, são degenerados. A expressão da energia para os átomos alcalinos difere da equação para o hidrogênio, em dois aspectos: a constante de *Rydberg* leva em consideração a massa reduzida do elétron; e é utilizado o número quântico efetivo n^*, que corresponde a n subtraído do defeito quântico.

$$E_{nl} = -\frac{Ryd}{(n-\delta_l)^2} \tag{2.6}$$

O defeito quântico δ_l está relacionado ao fato de quando o elétron passar próximo ao caroço ele interage com os demais elétrons e o núcleo. Logo, a função de onda do elétron sofre uma mudança de fase correspondente a δ_l. O que ocorre é que para estados altamente excitados, o comportamento do regime quântico aproxima-se do regime clássico e podemos usar modelos semi-clássicos para descrição desses estados em termos da órbita do elétron para entendermos sua dinâmica.

O movimento do elétron ao redor do caroço nuclear é descrito pela teoria clássica de Bohr-Sommerfeld, a qual prevê para baixos valores de momentum

angular, l (estados s e p, por exemplo) órbitas elípticas de grande excentricidade onde uma parte depende de l e outra depende de n. Estados excitados hidrogenóides quando tratados em primeira aproximação consideram o caroço como pontual, onde surgem algumas restrições quanto a esta consideração. Nesta aproximação para baixos l o elétron de valência penetra no caroço a cada revolução, independente do valor de n e isso afetará as propriedades atômicas.

Desta forma é necessário distinguir órbitas penetrantes (baixos valores de l) e órbitas não penetrantes (altos valores de l) para as quais é valido o modelo de caroço pontual. Para o caso específico de órbitas penetrantes, em que o modelo de caroço pontual não é valido, foi desenvolvido o método de defeito quântico, o qual se adapta a série de Rydberg. Essa teoria se apóia no fato da interação entre o elétron de valência e o caroço ser limitada a uma pequena região do espaço em volta do núcleo com raio r_0. Uma vez que o elétron esta em uma região cujo r seja maior que r_0, o potencial nessa região é Coulombiano e conseqüentemente que satisfaz as condições de contorno para $r = r_0$ e $r \rightarrow \infty$. Tratando-se de interação de curto alcance, Ham [13] mostrou que a função de onda precisa ser uma função analítica da energia em todo espaço.

As propriedades que distinguem os átomos de Rydberg dos átomos convencionais são reflexo direto de seu comportamento hidrogenóide [14]. Tomamos como um exemplo o H e o Na em estados de Rydberg. A diferença entre os dois está no seu "caroço" nuclear, o H apresenta um núcleo, considerado pontual, de *carga* +1 enquanto o Na apresenta um caroço nuclear positivo composto de onze prótons e dez elétrons. Se considerarmos baixos valores de l (órbita penetrante), o elétron passa a maior parte do tempo longe do caroço nuclear, o que torna mínima as diferenças de energia entre H e Na. Por outro lado, quando o elétron se encontra próximo a ele,

IFSC-USP INFORMAÇÃO

pode tanto penetrá-lo quanto polarizá-lo. Este efeito exercido pelo caroço nuclear sobre o movimento do elétron de valência gera grandes defeitos quânticos (cujo significado físico é um deslocamento de fase na função de onda atômica) e uma quebra do comportamento hidrogenóide, o que implica numa mudança na função de onda e na energia do estado de Rydberg do *Na,* comparada com o *H.*

No caso para altos valores de *l,* as órbitas se tornam mais circulares, os átomos mais hidrogenóides e os defeitos quânticos menores (δ varia com l^{-5}), isto em decorrência que o elétron de Rydberg não se aproxima o suficiente de caroço nuclear para perturbá-lo. Desta forma a diferença entre os estados de Rydberg do *H* e do *Na* é a diminuição de energia dos estados do *Na* para baixos *l.* As propriedades gerais dos átomos de Rydberg obedecem, então, a uma lei de escala que varia com o número quântico $n^* = n - \delta_l$. Basicamente este irá depender do momento angular, *l,* uma vez que δ também depende. A figura 2.1 mostra a forma da função de onda radial para os alcalinos e hidrogonóides [14, 15].

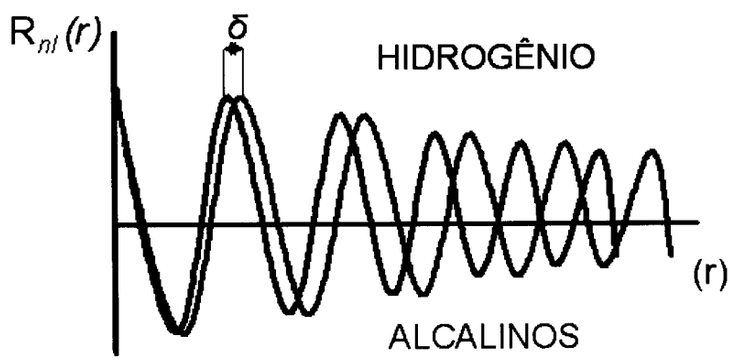

Figura 2.1: Representação das funções de onda do Hidrogênio e dos átomos alcalinos. A curva preta representa a função de onda para os átomos de Hidrogênio e a curva vermelha representa a função de onda para os alcalinos. O potencial mais baixo dos alcalinos introduz um deslocamento radial, δ. Este deslocamento leva a um decréscimo das energias nos estados de baixo *l* dos alcalinos em relação ao hidrogênio.

Na seqüência nós temos a tabela 1 na qual apresentamos uma relação de propriedades dos átomos de Rydberg e o modo como eles obedecem a esta lei de escala $n^* = n - \delta_l$. Para maiores detalhes dos cálculos sugerimos ao leitor as referências [16].

Propriedades	**Dependência com n^*.**
Energia de ligação	$(n^*)^{-2}$
Energia entre estados adjacentes	$(n^*)^{-3}$
Raio orbital	$(n^*)^{2}$
Seção de choque geométrica	$(n^*)^{4}$
Momento de dipolo: $< n l \| r \| n' l' >$	$(n^*)^{2}$
Campo ionizante	$(n^*)^{-4}$
Polarizabilidade	$(n^*)^{7}$
Tempo de vida radioavitvo	$(n^*)^{3}$ (para l pequeno). $(n^*)^{5}$ (para l grande).
Intervalo de estrutura fina	$(n^*)^{-3}$

Tabela 2.1: Lei de escala das propriedades dos átomos de Rydberg em função de número quântico efetivo n^* [17].

Os átomos de Rydberg apresentam as suas características exacerbadas, como: grandes dimensões, grande momento de dipolo (implicando numa forte interação com campos eletromagnéticos), e longo tempo de vida. O fato do tempo de vida dos estados de Rydberg ser relativamente longo, associado à forte interação com a radiação eletromagnética, torna estes átomos ótimos para investigações espectroscópicas precisas.

2.3 Efeito Stark em Átomos de Rydberg.

Os níveis de energia de um átomo podem ser alterados pela ação de campo elétrico, o chamado efeito Stark. Basicamente o acoplamento do elétron com o campo coulombiano cresce com n^2, enquanto a energia de ligação decresce com n^{-2}; desta forma o efeito Stark interfere na estrutura dos níveis do átomo mesmo para pequenos campos, o que torna o seu estudo de fundamental importância [18,19]. O efeito imediato disto é o levantamento na degenerescência dos estados *lm* para um determinado número quântico *n*. Desta forma, os átomos de Rydberg alcalinos, sob a influência de um campo elétrico, sofrem um efeito interessante de desvio no potencial coulombiano para *r* pequeno, alterando significativamente seu comportamento hidrogenóide.

Com isto as colisões entre átomos de Rydberg envolvendo transferência de excitação podem se tornar ressonantes com aplicação de um campo elétrico estático. Este processo ocorre da seguinte forma: os átomos iniciam a colisão, podendo estar no mesmo estado ou não [20]. Suponhamos que eles estejam nos estados $\left|n_1 l_1 m_{j1}\right\rangle$ e $\left|n_2 l_2 m_{j2}\right\rangle$, com energias W_1 e W_2. O momento de dipolo do átomo 1, interage com o momento de dipolo do átomo 2, quando passam um próximo ao outro. Esta interação dipolo-dipolo faz com que os átomos 1 e 2 sofram uma transição de dipolo para os estados $\left|n_1' l_1' m_{j1}'\right\rangle$ e $\left|n_2' l_2' m_{j2}'\right\rangle$ com energias W_1' e W_2' respectivamente. As transições de dipolo exigem que $\Delta l_i = \pm 1$ e $\Delta m_{ji} = 0, \pm 1$. Em um experimento, nós podemos imaginar que a energia dos átomos é alterada por algum parâmetro o qual nós devemos controlar de alguma maneira continua. Chamamos então este parâmetro de ξ, e podemos então visualizar este processo observando a figura 2.2.

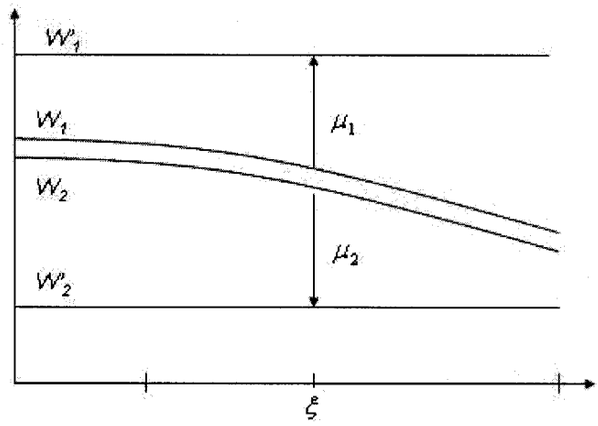

Figura 2.2: Esquema representando o processo de colisão ressonante de energia. Mostramos que os níveis de energia atômico depende do parâmetro de controle ξ. Note que $|W_1' - W_1| = |W_2' - W_2|$ indica a posição de ressonância. μ_1 e μ_2 são os elementos de dipolo da matriz das transições permitidas.

Ao analisarmos a figura 2.2, vemos que este parâmetro de controle é essencial para que ocorra o processo de colisão, em decorrência que ele altera os níveis de energias dos átomos de tal maneira que a colisão só ocorrerá se houver conservação de energia. Este parâmetro trata-se, portanto, de um campo elétrico aplicado. O que ocorre é que a diferença de energia entre os estados é muito pequena, permitindo encontrar estados que permitam colisões envolvendo transferência de energia.

Essa sensibilidade dos átomos de Rydberg ao efeito do campo elétrico é largamente aplicada na detecção dos mesmos e a técnica utilizada chama-se ionização por campo ionizante. Este tipo de detecção permite não somente obter uma medida das populações nos estados de Rydberg, mas também para determinar em qual estado *nl* os átomos estão, sendo assim extremamente seletiva. Esta detecção faz uso do baixo limite de ionização dos átomos. Experimentalmente utiliza-se um campo pulsado [21] cujo tempo de subida pode variar entre nanossegundos e microssegundos. Em geral, aplica-se este campo depois de um intervalo de tempo em

relação ao pulso do laser usado para excitação. Maiores detalhes sobre a técnica de ionização por campo serão apresentados no capitulo 3.

2.4 Efeito da Radiação do corpo Negro sob Transições Atômicas.

No estudo de átomos de Rydberg a contribuição da radiação do corpo negro é muito importante. Isto em decorrência que quando trabalhamos com átomos de Rydberg os níveis de energias estão muitos próximos, ou seja, $\Delta W < kT$ a 300 K. Neste intervalo de energia, há um número considerável de fótons no campo de radiação que pode induzir transições entre níveis atômicos vizinhos, levando à ionização ou decaimento do átomo [22]. Estas transições são favorecidas em decorrência que os estados de Rydberg por estarem muito próximo uns dos outros possuem uma baixa freqüência de transição e elementos de matriz de dipolo grande, favorecendo um excelente acoplamento com a radiação.

Portanto, nós devemos levar em conta tais efeitos quando estudamos tempo de vida atômico, colisões atômicas, etc. Devemos então calcular taxas de transição induzidas entre níveis vizinhos, já que é um dos efeitos mais importantes da radiação de corpo negro em um átomo [23]. Observações experimentais que chamaram a atenção para a radiação do corpo negro sob átomos de Rydberg foram feitas usando estados de Rydberg dos átomos de Xe e Na [24, 25]. Em ambos os experimentos foram medidas a redistribuição de população e o aumento da taxa de decaimento. Vamos considerar somente o experimento realizado com os átomos de Xe, onde em um feixe metaestável, os átomos eram excitados para os estados 26f por um pulso de laser e expostos à radiação térmica por períodos de 1,5 μs, 7,5 μs e 15,5 μs. Após

este tempo de exposição um campo (rampa) era aplicado sob os átomos. Nesta seqüência obtiveram um sinal do campo de ionização como mostra a fig. 2.3.

Para cada tempo de atraso existe uma progressão dos picos no espectro de ionização por campo, o qual corresponde a cada valor de n. Para grandes tempos de atraso e $n > 26$ a intensidade do pico aumenta, como seria esperado para tempos de exposição longos à radiação térmica. Além disso, devido ao fato das transições induzidas pela radiação de corpo serem transições de dipolo, somente os estados finais d e f são esperados. O fato do espectro de ionização por campo exibir um pico estreito para cada n é consistente somente com um ou dois estados; nem todo estado l será populado pela radiação térmica. Se todos os estados fossem populados não haveria um pico bem definido conforme podemos ver na figura 2.3.

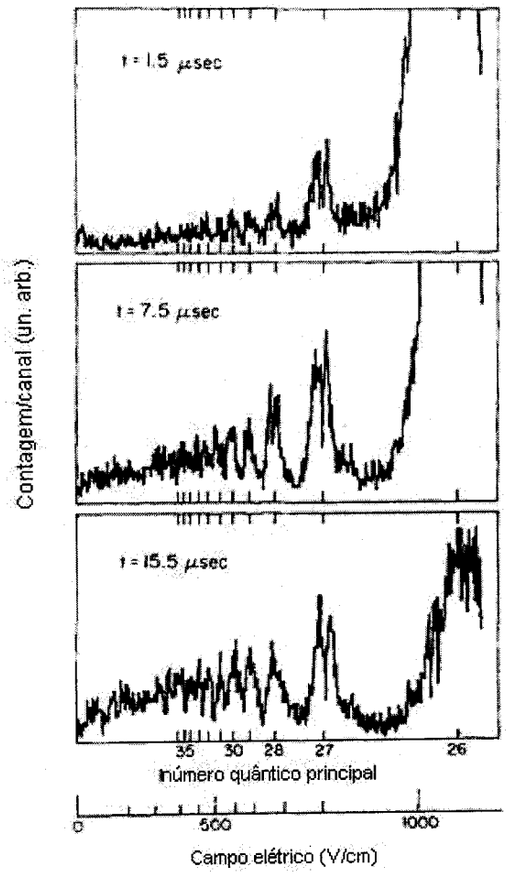

Figura 2.3: Espectros de ionização por campo para diferentes tempos de atraso após o laser excitar átomos de Xe para o nível 26*f* mostrando a radiação de corpo negro induzindo transições para altos níveis. Tempos de exposição dos átomos expostos à radiação térmica por períodos de 1,5 μs, 7,5 μs e 15,5 μs [24, 25].

2.5 Primeiros Experimentos Com Átomos de Rydberg Frios.

Um dos trabalhos pioneiros no estudo de processos de colisões ressonantes foi realizado por Lowel em 1998 [26], no qual considerou que durante a realização do experimento os átomos permanecem estáticos e o processo de troca de energia entre eles ocorreria via muitos corpos. Posteriormente surge o trabalho de Anderson [27] no qual alega que as colisões ressonantes dipolo-dipolo dependem da temperatura, ou seja, ocorrem via colisões de dois corpos para 300 K. Ao contrário, para 300 μK, interagem via muitos corpos.

Este tipo de interação segundo Lowel e Anderson ocorre da seguinte maneira: Em um experimento onde a densidade de átomos de Rydberg ($n \sim 33$) é da ordem de $N_d \sim 10^9$ atomos/cm^3 e estão a uma temperatura de 300 μK. O deslocamento típico ($\Delta R = v\tau \sim 1$ μm) dos átomos que possuem uma velocidade média de 38 cm/s durante o tempo experimental ($\tau = 3$ μs) é muito menor do que a distância de interação média ($R_0 \sim (3/4\pi N_d) = 10$ μm) entre os átomos. Ou seja, durante o tempo experimental eles se movem menos de 10% da separação internuclear. Então, em primeira ordem de aproximação esses átomos são considerados como "congelados" em sua posição durante o processo experimental e interagem via muitos corpos.

Mas paralelamente ao trabalho de Anderson, ou seja, em 1998 [28], surgem outros experimentos e novas interpretações, um deles realizado por Mourachko, que trabalhando com átomos de Cs a uma temperatura de 100 μK e densidade $10^{8\text{-}10}$ cm^{-3}, propõe que há uma relação entre dois e três corpos e isto pode ser visto na largura e forma da linha espectral proveniente da transferência ressonante de energia devido às múltiplas interações simultâneas entre os átomos que afetam de um modo ainda não explicado a largura e forma das linhas espectrais. Mourachko considera que o número de estados S criados no processo de troca de energia é escrito pela equação:

$$Cs_A[nP_{3/2}] + Cs_B[nP_{3/2}] \rightarrow Cs_A[nS_{1/2}] + Cs_B[(n+1)S_{1/2}] \qquad (2.7)$$

que tem o seguinte significado físico: quando um dos átomos ***A*** faz uma transição do estado $|nP_{3/2}\rangle$ para um estado mais baixo $|nS_{1/2}\rangle$, o outro átomo ***B*** faz uma transição $|nP_{3/2}\rangle \rightarrow |(n+1)S_{1/2}\rangle$. Para cada um dos átomos a transição de dipolo é permitida, e possuem uma interação típica $V_{AB} = \mu_A \mu_B / R_{AB}^3$ que depende dos elementos de matriz dos momentos de dipolo μ_A e μ_B, e da distância R_{AB} entre os átomos. O processo descrito pela Eq. 2.7 é ressonante por causa da aplicação de um campo elétrico estático ***E***, como mostra a figura 2.4(a). Além do par criado *ss'*, que são os dois estados *s* na Eq. 2.7, o processo de troca de excitação com outros átomos (denominados por *C*, *D*. etc) são também possíveis:

$$Cs_C[nP_{3/2}] + Cs_A[nS_{1/2}] \rightarrow Cs_C[nS_{1/2}] + Cs_A[nP_{3/2}], \qquad (2.8)$$

$$Cs_D[nP_{3/2}] + Cs_B[(n+1)S_{1/2}] \rightarrow Cs_D[(n+1)S_{1/2}] + Cs_B[(nP_{3/2})]$$

e eles estão sempre ressonantes e possuem a mesma ordem de magnitude como no processo da Eq. 2.8, porém não criam novos pares *ss'*, mas podem migrar para os estados *s*. Mourachko propõe um novo sistema quântico para esses átomos considerados em repouso, o qual envolve os processos de troca de energia da Eqs. 2.7 e 2.8. Ou seja, os pares *ss'* são criados e cada estado *s* migra independentemente sob o meio do gás de Rydberg congelado (figura 2.4(b)).

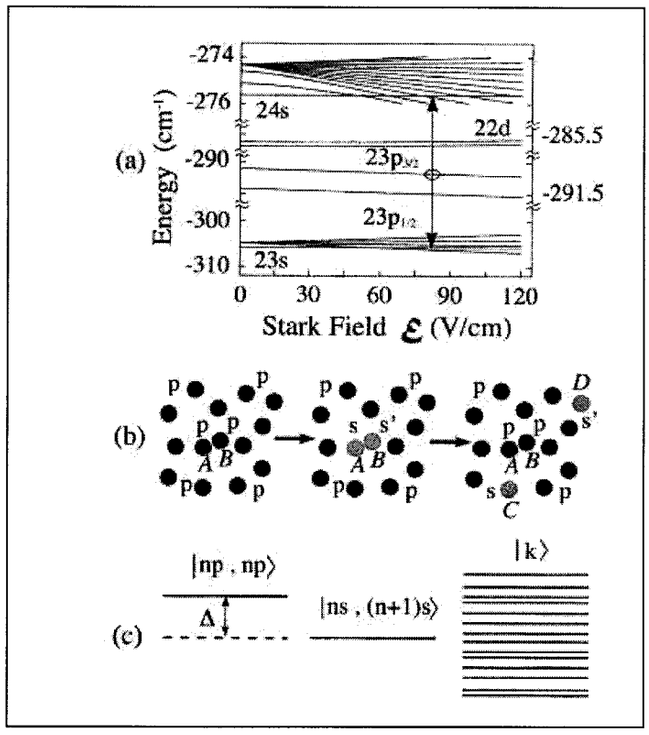

Figura: 2.4: (a) Mapa Stark para um átomo de Cs isolado em campo elétrico para o número quântico $n = 23$. Estados de Rydberg *S*, *P*, e *D* estão juntos com os múltiplos desdobramentos Stark. O cruzamento evitado dos níveis e múltiplos desdobramentos estão localizados distantes das ressonâncias para excluir qualquer influência. A separação dos estados $|m| = 1/2$ e $|m| = 3/2$ para o nível $np_{3/2}$ é da ordem de 1,2 GHz. (b) ilustração elementar do processo de troca de excitação no qual inclui a criação de um par *ss'* em um par (A+B) e subseqüentemente evoluindo para estados C, D, etc. para longas distâncias, e o correspondente esquema dos níveis (c) para os pares (A+B) envolvidos entre os outros átomos do sistema.

Na figura 2.5 podemos ver o comportamento das linhas de ressonâncias para as transições representadas pela Eq. 2.7. Vemos que a largura da linha e forma mudam com o aumento da densidade de átomos de Cs ($23P_{3/2}$, |m| = 1/2), evidenciando o efeito de muitos corpos no processo de transferência de energia, segundo interpretações dos autores.

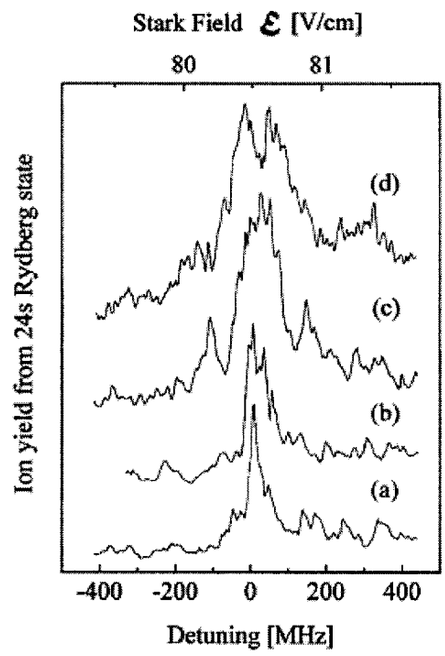

Figura 2.5: Transferência de energia ressonante para a Eq. 2.7 dos estados $23P_{3/2}$ com $|m| = 1/2$. O estado proveniente das interações $24S_{1/2}$ como função do atraso controlado pelo campo E. As respectivas densidades dos átomos de Cs ($23P_{3/2}$, $|m| = 1/2$) são: (a) $4x10^8$ cm^{-3}, (b) $7x10^8$ cm^{-3}, (c) $4x10^9$ cm^{-3} e 10^{10} cm^{-3}.

Processos de colisões por transferência de energia, têm sido interpretado de maneira diferente pelo nosso grupo, nós acreditamos que neste tipo de processo colisional há movimento atômico e ele não pode ser desprezado. Em nosso grupo foram realizados experimentos com transferência de energia usando átomos de Rydberg frios de Rubídio em uma armadilha magneto-óptica, onde nós estudamos o processo colisional $nP_{3/2} + nP_{3/2} \rightarrow nS_{1/2} + (n+1)S_{1/2}$, para n = 29 e 33, e monitoramos as populações ($29S_{1/2}$ ou $34S_{1/2}$) [29] provenientes das colisões como função do tempo. Em nossas análises constatamos que a evolução temporal das populações observada apresentava um comportamento independente da densidade (ou seja, para várias densidades o formato da curva obtida era o mesmo), mas a amplitude deste sinal era dependente da densidade ao quadrado dos pares colidindo.

Para interpretarmos os resultados propomos que os átomos movimentam-se e interagem entre si via dois corpos e não via muitos corpos como proposto anteriormente por outros grupos. Estes resultados experimentais eram qualitativamente reproduzidos por um modelo semi-clássico o qual leva em conta a dinâmica do processo colisional sob a influência de um potencial $1/R^5$. Em nossas hipóteses, o par atômico é acelerado um contra o outro sob a ação deste potencial de interação até atingir uma região de curto alcance onde ocorre o processo de colisão ressonante.

Uma recente contribuição teórica deu respaldo ao nosso modelo através do cálculo dos potencias atrativos. Estes potencias de interação foram recentemente calculados por Boisseau [30] que, estudando teoricamente as interações de longo alcance entre dois átomos de Rydberg em um mesmo estado nP_J, previu a existência destes potenciais de interação calculando os coeficientes de dispersão C_5, C_6 e C_8 . A magnitude e o sinal dos coeficientes de dispersão dependem da simetria molecular considerada, e utilizando-os, é possível obter a forma do potencial de longo alcance e curto alcance e a sua contribuição para longas distancias R^{-5} e curtas distâncias internucleares (R^{-6} *ou* R^{-8}). Esta teoria de potenciais também foi comprovada experimentalmente por Farooq em 2003 [31] estudando ressonâncias moleculares de longo alcance em um gás de Rydberg frio, e posteriormente por Killian em 2004 [32] que mostrou que os átomos interagem a uma grande distância internuclear, e podem induzir alargamento espectral e supressão de excitação [33] em função da densidade.

Outras contribuições surgem de um novo experimento feito por Li em 2005 [34] que publicou um trabalho com átomos de Rydberg no qual ressalta que a interação de dipolo-dipolo ressonante é responsável pelo movimento dos átomos mediante um potencial de interação $1/R^3$, ou seja, neste regime de baixa temperatura

há movimento dos átomos sob a ação de um potencial atrativo, e os processos de colisão ocorrem via dois corpos. Em uma recente publicação (2006) Knuffman [35] estudou os processos de colisões em uma AMO e determinou a velocidade dos átomos após a colisão utilizando a técnica de tempo de vôo. Segundo Knuffman em um gás de Rydberg frio os átomos colidem aos pares, sendo portando acelerados um em direção ao outro por uma força atrativa.

2.6 Modelo Teórico de Colisões de Dois Corpos.

Como vimos anteriormente há contribuições tanto teóricas como experimentais que reforçam as nossas hipóteses e experimentos ao longo dos anos. Isto significa que o modelo proposto é valido não somente para os nossos resultados, mas também para outros experimentos. A seguir apresentaremos o modelo semi-clássico desenvolvido pelo nosso grupo para descrever os processos colisionais com transferência de energia em átomos excitados. No modelo o movimento dos pares atômicos sob ação dos potenciais de interação é tratado classicamente, permitindo assim que os efeitos do fenômeno de emissão espontânea sobre a colisão possam ser estendidos a partir de uma formulação conceitual mais simples do que aquela conseguida a partir de um tratamento puramente quântico.

Iniciaremos portanto a descrição do nosso modelo, inicialmente consideraremos que em t = 0 o pulso de excitação (laser) transfere os átomos para o potencial de Rydberg selecionado, no qual todas as separações são possíveis entre $R = 0$ e $R \rightarrow \infty$,. Tomamos como exemplo o potencial nS + nS (ver figura 2.6). Então os átomos são acelerados um contra o outro até atingirem uma região de pequena separação internuclear. Neste ponto o par troca de potencial, terminando a

colisão no estado *nP* + *(n-1)P*. Mas para calcular a evolução temporal da população no estado *nP* ou *(n-1)P* exatamente, seria necessário conhecer em detalhes as curvas de potencial na região de curto alcance. Entretanto, até o momento não existe na literatura tal informação. Desta forma, suporemos o potencial de longo alcance $1/R^6$ como dominante em toda a região. Vamos considerar que o potencial para os quais os átomos são excitados (*nS* + *nS*) é o de maior energia, em relação ao potencial em que eles terminam a colisão (*nP* + *(n-1)P*). Um diagrama ilustrativo deste modelo pode ser visto na figura 2.6, o qual estamos considerando como exemplo a colisão *nS* + *nS* → *nP* + *(n-1)P*.

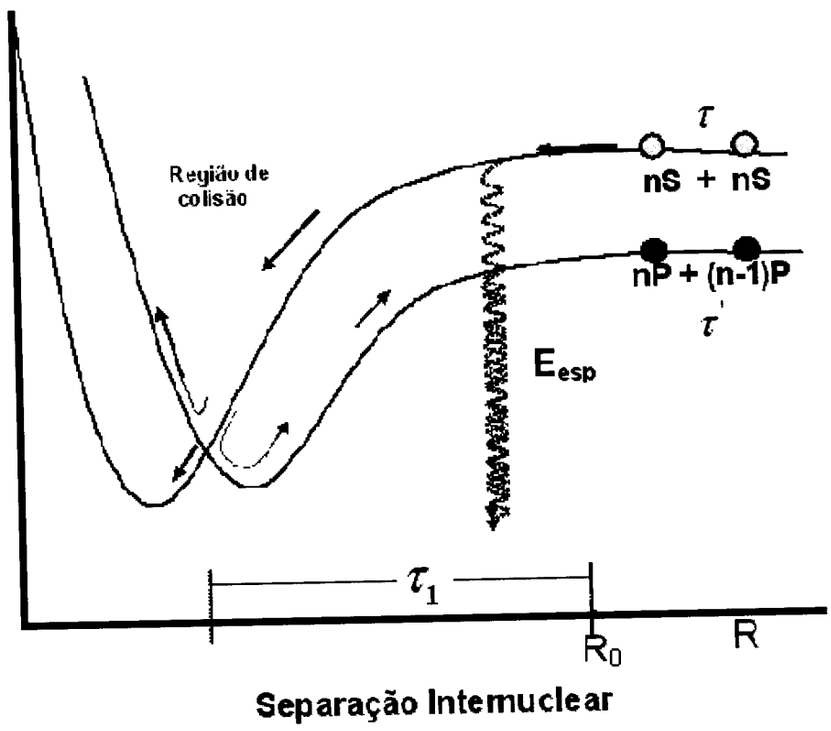

Figura 2.6: Diagrama esquemático do processo colisional: o par inicia a colisão no potencial *nS* + *nS* e termina o processo no potencial *nP* + *(n-1)P*. O cruzamento na região de curto alcance está apenas esquematizado aqui.

Iniciaremos, portanto, considerando o número ΔN de pares $nS + nS$ (que estão no estado excitado e ocupam um determinado volume) que se encontram a uma separação internuclear R_0 e $R_0 + dR_0$ e que levam um intervalo de tempo τ_1 e $\tau_1 + dt$ para atingir uma curta separação internuclear. O número de pares atômicos colidindo numa separação R_0 e $R_0 + dR_0$ é dado por:

$$\Delta N = \frac{4\pi}{2} n^2 R_0^2 dR_0 \tag{2.9}$$

Variando com a distância dos núcleos e a densidade n de átomos de Rydberg ao quadrado, portanto, quanto maior for a separação internuclear maior o número de pares excitados colidindo, porém, para pequenas separações o número de pares será menor. Após a excitação em $R = R_0$ os átomos são acelerados uns em direção ao outro sob a ação de um potencial atrativo $-C_6/R^6$ durante um intervalo de tempo até atingir uma curta separação internuclear $R = 0$. É obvio que o tempo para atingir uma pequena separação internuclear deve ser menor que o tempo de vida dos respectivos átomos colidindo. Podemos obter o tempo para atingir o ponto de cruzamento utilizando o princípio de conservação de energia, onde assumiremos que os átomos possuem uma velocidade inicial igual a zero:

$$\Delta E = U = \frac{\mu v^2}{2} = C_6\left(-\frac{1}{R^6} + \frac{1}{R_0^6}\right). \tag{2.10}$$

onde μ é a massa reduzida do par atômico e ΔE é a diferença de energia entre os potenciais. Desta Eq. a velocidade se escreve

$$\frac{dR}{dt} = v = \left[\frac{2}{\mu} C_6\left(-\frac{1}{R^6} + \frac{1}{R_0^6}\right)\right]^{1/2}. \tag{2.11}$$

Integrando esta equação de movimento. Temos

$$\int_0^t dt = \int_{R_0}^{R} \left(\frac{\mu}{2C_6}\right)^{1/2} \left(-\frac{1}{R^6} + \frac{1}{R_0^6}\right)^{-1/2} dR\,. \tag{2.12}$$

A solução dessa equação é obtida fazendo-se uma mudança de variável:

$$S = 1 - \frac{R^6}{R_0^6} \Rightarrow R = R_0 (1-S)^{1/6}\,, \tag{2.13}$$

onde $dR = -\frac{R_0}{6}(1-S)^{-5/6} dS$, e substituindo na equação 2.11, obtemos;

$$t(R_0) = \left(\frac{\mu}{2C_6}\right)^{1/2} \int_0^1 \frac{R_0^4}{6S^{1/2}} (1-S)^{-2/6} dS\,. \tag{2.14}$$

A integral que faz parte da eq. 2.14 pode ser resolvida com o auxilio de uma função gama:

$$\int_0^1 t^{x-1}(1-t)^{y-1} dt = \frac{\Gamma(x)\Gamma(y)}{\Gamma(x+y)}; \quad \text{onde } x, y > 0\,. \tag{2.15}$$

então para:

$$\int_0^1 S^{-1/2}(1-S)^{-2/6} dS = \frac{\Gamma(1/2)\Gamma(4/6)}{\Gamma(7/6)} = 2{,}587\,, \tag{2.16}$$

obtemos o tempo necessário que o par leva para atingir uma curta separação internuclear:

$$t(R_0) = 2{,}587 \left(\frac{\mu}{2C_6}\right)^{1/2} \frac{R_0^4}{6}\,. \tag{2.17}$$

Mas na equação 2.9 precisamos saber o número de pares colidindo entre R_0 e dR_0. Portanto façamos:

$$R_0^4 = 3{,}2799 \left(\frac{C_6}{\mu}\right)^{1/2} t(R_0) \Rightarrow R_0 = \left[3{,}2799 \left(\frac{C_6}{\mu}\right)^{1/2}\right]^{1/4} (t(R_0))^{1/4} \tag{2.18}$$

tomando a derivada, obtemos:

$$dR_0 = \left[3{,}2799\left(\frac{C_6}{\mu}\right)^{1/2}\right]^{1/4} \frac{1}{4}\left(t(R_0)\right)^{-3/4} dt \tag{2.19}$$

Reescrevendo a equação 2.9 em termos de R_0 (eq. 2.18) e dR_0 (eq. 2.19): obtemos o número de pares que atingem a região de cruzamento R_c num intervalo de tempo:

$$\Delta N = 3{,}826\left(\frac{C_6}{\mu}\right)^{3/8} n^2 t^{-1/4} dt\,. \tag{2.20}$$

Mas para os pares atingirem uma região de curto alcance eles devem sobreviver à emissão espontânea, e ao atingirem a região de curto alcance o par tem a probabilidade q de mudar de potencial. Então, podemos escrever a probabilidade que leva em consideração a sobrevivência dos pares e a mudança de potencial como:

$$P_r = qe^{-2t/\tau}, \tag{2.21}$$

onde τ é o tempo de vida do estado inicial no qual estamos considerando no inicio da colisão (nS), e o fator **2** é por que temos dois átomos e qualquer um deles pode decair. A probabilidade (P_r), considera o fato do par colisional atingir a região de curto alcance sem decair e retornar a região mais externa do potencial. Mas, devemos lembrar que isto talvez não ocorra na primeira meia oscilação, e o par possa sofrer mais oscilações antes de mudar de potencial ou decair. Portanto, devemos levar em conta todos os ciclos em que é possível que isto ocorra. Uma maneira de considerarmos todos as oscilações possíveis é escrever a Eq. 2.21 na forma de uma expansão em series de potências:

$$P = e^{-2t/\tau}q + e^{-2t/\tau}(1-q)e^{-2t/\tau}e^{-2t/\tau}q + e^{-2t/\tau}(1-q)e^{-2t/\tau}e^{-2t/\tau}(1-q)e^{-2t/\tau}e^{-2t/\tau}q + \ldots,$$

onde podemos escrevê-la da seguinte maneira

$$P = \frac{e^{-2t/\tau} q}{1-(1-q)e^{-4t/\tau}} . \tag{2.22}$$

A última etapa deste modelo consiste em determinar o número de pares que mudaram de potencial em um intervalo de tempo $t < \tau_1$ (τ_1 é um tempo arbitrário) e não sofreram decaimento espontâneo no potencial *nP +(n-1)P*, mesmo estando a grandes distâncias internucleares. O fator $e^{-(\tau_1 - t)/\tau'}$ considera a fração da população que mudou de potencial em um tempo t e sobreviveu ao decaimento espontâneo no estado *nP*. Para isso, reescreveremos a Eq. 2.20 considerando a probabilidade descrita pela Eq. 2.22 e integrando-a no intervalo entre $t = 0$ e $t = \tau_1$. Desta forma o número total de pares que sofrem colisões e terminam no estado *nP +(n-1)P* será dado por:

$$N = 3{,}826\left(\frac{C_6}{\mu}\right)^{3/8} n^2 \int_0^{\tau_1} \frac{e^{-2t/\tau} q e^{-(\tau_1 - t)/\tau'} t^{-1/4}}{1-(1-q)e^{-4t/\tau}} dt , \tag{2.23}$$

onde τ' é o tempo de vida do estado final *nP*. A eq. 2.23 nos possibilita prever o comportamento da população atômica em função do tempo.

Tomaremos como exemplo a colisão $33S_{1/2} + 33S_{1/2} \rightarrow 33P_{3/2} + 32P_{3/2}$. Para tempos de interação pequenos (ver figura 2.7), o número de pares que atingem curtas distâncias internucleares (a região de cruzamento) é pequeno, assim a população proveniente da colisão é pequena (considerando o estado: $33P_{3/2}$). Conforme o tempo aumenta, pares que estão a separações internuclares maiores atingem a região de cruzamento incrementando a população do estado $33P_{3/2}$. Para tempos maiores, o mecanismo responsável pelo decréscimo da população no estado $33P_{3/2}$ é o decaimento espontâneo dos estados $33S_{1/2}$ e $33P_{3/2}$. Na figura 2.7 podemos observar a evolução temporal da população do estado $33P_{3/2}$. Os pontos representam os dados

experimentais obtidos nesta tese (maiores detalhes de como é realizado o experimento de detecção da evolução da população proveniente da colisão será fornecido no próximo capítulo), e a linha cheia representa o comportamento previsto pelo modelo para um valor fixo de probabilidade de população do estado $33P_{3/2}$. O tempo de vida para o estado $33S_{1/2}$ é 17,83 μs e para $33P_{3/2}$ é 58 μs.Os tempos de vida utilizados constam na referência [36].

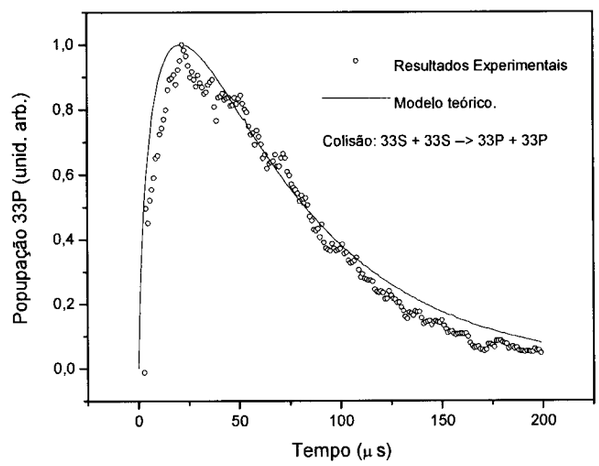

Figura 2.7: Evolução do número total de pares que sofrem colisão, os pontos são os resultado experimentais; a curva representa o comportamento previsto pelo modelo, o único parâmetro livre nesta curva é a probabilidade q, tomamos para este exemplo $q = 0{,}5$.

É importante enfatizarmos que é o único parâmetro livre neste modelo é a probabilidade de haver uma mudança de potencial, q. Esta probabilidade pode ser calculada usando-se o modelo de Landau-Zener [37], esta probabilidade é dada por:

$$q = 2e^{-A}(1 - e^{-A}) \tag{2.24}$$

sendo:

$$A = \frac{2\pi\Omega^2}{hv\frac{dV}{dR}},$$

onde Ω é o elemento de matriz responsável pelo acoplamento entre os potenciais nucleares, v é a velocidade atômica no ponto de cruzamento dos potencias e $\frac{dV}{dR}$ é a diferença das derivadas dos potenciais no ponto de cruzamento.

Bibliografia.

[1] Bassalo, José Maria, *Crônicas da física*, Tomo 3, Belém: Editora e Gráfica Universidade Federal do Pará, (1990).

[2] J. E. Brady, *Química geral,* Vol. 1, Tradução de Cristiana Maria Pereira Lopes Dos Santos e Roberto de Barros Farias, 2 ed. Rio de Janeiro: Editora Livros Técnicos e Científicos, (1986).

[3] D. Halliday, R. Henisck, *Física*, vol. 3; tradução de Antonio Leite Videira, Revisão técnica de Moises Luiz, 4 ed., Editora Livros Técnicos e Científicos, (1978).

[4] Tipler, Paul, *Óptica e Física Moderna*, 3 ed, Rio de Janeiro: Editora Guanabara Koogan, (1994).

[5] Bassalo, José Maria site na net: http://www.bassalo.com.br/.

[6] Eisberg, Robert, *Física Quântica: átomos, moléculas, núcleos e partículas.* Robert Eisberg e Roberto Resnick; tradução de Paulo Costa Ribeiro. Rio de Janeiro, Editora Campus, (1979).

[7] Daniel Klepner, Comunicação pessoal.

[8] D. K. Kleppner, M. Littman and M. Zimmerman, Scientific American, **244**, 708 (1981)

[9] S. Haroche, and J. M. Raimond, Advances in Atomic and Molecular Physics, **20**, 347-411, (1985).

[10] V. S. Bagnato, *Apostila de Física Atômica e Molecular*, IFSC/USP.

[11] A. Gurtler, A. S. Meijer,.*Rydberg atoms in low-frequency field Fundamental aspects and applications*, ISBN 90-77209-2 (1972).

[12] H. .A. Bethe and E. A Salpeter, *Quantum Mechanics of One and Two Electron Atoms* , Academic Press, New York, (1957).

[13] F. Ham, Solid State Phys. **1**, 127 (1955).

[14] R. F. Stebbing and F. B. Dunning *Rydberg states of atoms and molecules*, Cambridge University Press, (1983)

[15] T. F Galagher , Rep. Prog. Phys. **51**, 143 (1988).

[16] J. A. C Gallas, G. Leuchs, H. Walther and H. Figger, *Advanced in Atomic and Molecular Physcs,* Academic Press (1985); T. F Galagher , Rep. Prog. Phys. **51**, 143 (1988).

[17] K. T. Singer, *Interaction in an ultracold gas of Rydberg atoms*, PhD. Thesis, Freiburg in Brusgau, Germany (2004).

[18] T. W. Ducas, M. G. Littman, R.R. Freman and D. Kleppner, Phys. Rev. Lett. **35**, 366 (1975)

[19] M. Zimmerman, M. G. Littman, M. M. Kash and D. Kleppner, Phys. Rev. A. **20**, 2251 (1979).

[20] T. F. Galagher, Phys. Rept. **210**, 319 (1992).

[21] T. F. Gallagher, Rydberg Atoms, Cambridge University Press, Cambridge (1994).

[22] A. Yariv, *Quantum eletronics,* 3 nd Copyright by John Wiley and Sons, New York, Printed in the United States of America (1989).

[23] R Leighton, M Sands, R. P Feynman, *Mainly Mechanics, Radiation and Heat*, V. 1 *of Lectures On Physics* , Addison-Wesley-Publishing, London, (1977).

[24] E. J. Beiting, G. F. Hildebrandt, F. G. Kellert, G. W. Foltz, K. A. Smith, F. B. Dunning and R. F. Stebbing, J. Chem. Phys. **70**, 3551 (1979).

[25] T. F. Galagher and W. E . Cooke, Phys. Rev. Lett. **42**, 835 (1979).

[26] J. R. Lowel. *Dipole-Dipole Interactions in a Frozen Rydberg Gas*. PhD thesis, University of Virginia, (1998).

[27] I W. R. Anderson, J. R. Veale and T. F. Galagher, Phys.Rev.Lett. **80**, 249 (1998).

[28] I. Mourachko, W. Li and T. F. Galagher, Phys.Rev. Lett. **80**,253 (1998).

[29] R. A. D. S. Zanon, K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira and L. G. Marcassa, Phys. Rev. A. **65**, 023405 (2002); A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, Phys. Rev. Lett. **90**,143002 (2003).

[30] C. Boisseau, I. Simbotin and R. Côté, Phys. Rev. Lett. **88**, 133004-1 (2002).

[31] S. M. Farooqi, D. Tong, S. Krishnan, Y. P. Zhang, J. R. Ensher, A. S. Estrin, C Boisseau, R. Cote, Phys. Rev. Lett. **91**, 18002-1 (2003).

[32] K.T. Singer, J. Stanojovic, M. Weidemuller and R. Cote, J. Phys. B. At. Mol. Opt. Phys. **38**, 295 (2004).

[33] K. Singer, M. R. Lamour, T. Amthor, L. G. Marcassa, and M. Weidemuller, Phys. Rev. Lett. **93**, 163001 (2004).

[34] W. Li, P. J. Tanner and T, F. Galagher, Phys. Rev. Lett. **94**, 173001 (2005).

[35] B. Knuffman and Raithel, Phys. Rev. A, **73**, 020704 (2006).

[36] A. L. de Oliveira, M. W Mancini, V. S. Bagnato and L. G. Marcassa, Phys. Rev. Lett. **90**, 143002 (2003).

[37] L. D. Landau, Phys. Z. Sowjetunion **2**, 46 (1932); C. Zener, Proc. Soc. London, Rev. A. **137**, 696 (1932).

Capítulo 3

Montagem Experimental

A breve discussão que iniciaremos neste Capítulo é concernente ao nosso aparato experimental e técnicas utilizadas que foram úteis para a realização dos nossos experimentos. Descreveremos a seguir o funcionamento de uma armadilha magneto- óptica (AMO) e o sistema de lasers de aprisionamento, o sistema utilizado para a produção e detecção de átomos de Rydberg e posteriormente o esquema de aquisição de dados.

3.1 Armadilha Magneto Óptica (AMO)

Uma armadilha magneto óptica emprega campos ópticos e magnéticos para aprisionar átomos neutros. Maiores detalhes podem ser encontrados na literatura [1, 2], ou também em várias teses realizadas pelo grupo. Nos deteremos aqui simplesmente em explicar o princípio básico de funcionamento de uma **AMO** em uma dimensão que então será generalizada para três dimensões. Seja então um átomo hipotético de dois níveis, com estado fundamental de momento angular igual a S= 0 (m_s = 0) e o estado excitado com S = 1 (m_s = -1, 0 ou 1). Tal átomo se encontra

imerso em um campo magnético que varia linearmente com a posição. Suponhamos um campo fraco, de forma que se possa escrever a separação Zeeman como sendo linear com o campo, isto é, $\Delta E = \mu m_s B$. Dois feixes lasers, um com polarização σ^- propagando na direção –z e o outro com polarização σ^+ propagando-se na direção +z, ambos sintonizados abaixo da freqüência natural de ressonância do átomo, ou seja $\Delta < 0$. Agora considera-se as seguintes situações: para $z > 0$, o átomo absorve mais fótons do feixe polarizado σ^-, pois a freqüência deste está mais próxima da transição $S = 0\ (m_s = 0) \Rightarrow S = 1\ (m_s = -1)$. Para $z < 0$, ocorrerá, então, justamente o inverso, com o átomo absorvendo mais do feixe de polarização σ^+. Esta situação resulta em uma força restauradora que tenta manter o átomo na origem ($z = 0$). Devido ao fato da freqüência dos feixes estar abaixo da ressonância surge uma força dissipativa que remove energia do átomo. Desta forma, tem-se um sistema que aprisiona e resfria átomos, como podemos ver na fig. 3.1. Para a implementação deste sistema em três dimensões acrescentamos mais dois pares de lasers ortogonais contrapropagantes. O campo magnético tridimensional é gerado por um par de bobinas anti-Helmholtz como pode ser observado na fig. 3.1.

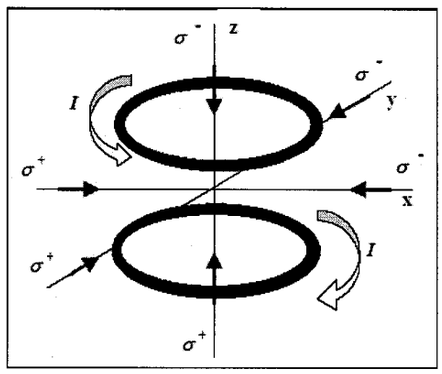

Figura 3.1: Diagrama esquemático das bobinas na configuração anti-Helmoholtz da AMO e os três pares feixes de lasers com as respectivas polarizações σ^+ e σ^-.As correntes das bobinas estão em direções opostas.

3.2 Aprisionamento dos átomos de ^{85}Rb.

A nossa armadilha magneto-óptica para aprisionar átomos opera em uma câmara de aço inoxidável fechada de formato cilíndrico contendo 14 janelas (como pode ser visto na figura 3.2), das quais 6 são utilizadas para o acesso óptico dos feixes de aprisionamento, uma para o feixe de excitação, enquanto que as demais são utilizadas para a observação e detecção de íons/elétrons e da fluorescência emitida pelos átomos aprisionados a partir do vapor. A nossa fonte de átomos de Rb é obtida por um *getter* (*dispenser)* que está acoplado à câmara de aprisionamento e permanece próximo à região central da AMO. Em nossa montagem experimental o vapor de Rb permanece dentro de uma câmara de alto vácuo a uma pressão de 10^{-8} torr mantida por bombas turbo-molecular e uma bomba iônica que funcionam independentemente. O vapor de Rb é obtido por dispositivos chamados de *dispenser*. Um *dispenser* é constituído basicamente por um composto do átomo a ser evaporado (Cromato de Rubídio) e um agente redutor que são enclausurados por uma capa de

aço inoxidável. A mistura é estável a temperatura ambiente, porém, quando aquecida, a reação de redução é catalisada liberando o vapor do metal a ser aprisionado [3].

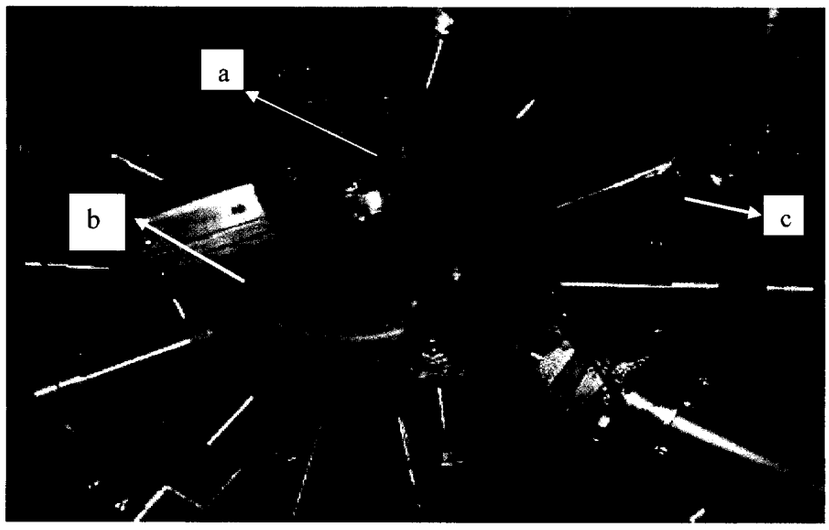

Figura.3.2: Fotografia mostrando a parte superior da armadilha, (a) Nossa câmara consiste de 14 janelas de acesso na qual contém na entrada sílica(vidro), (b) bobinas de compensação na configuração anti-Helmoltz , (c) a fonte de Rb (*dispenser*) e o detector são colocados em janelas separadas.

O átomo escolhido para este experimento corresponde ao ^{85}Rb (Spin nuclear: I=5/2). Esta escolha baseou-se na disponibilidade dos lasers em nosso laboratório para aprisionamento e excitação e na experiência do grupo em trabalhos realizados anteriormente [4, 5, 6]. Para obtermos um número considerável de átomos aprisionados em nosso experimento utilizamos uma corrente de **4,0 A** aplicada no *dispenser*. O campo magnético necessário para a abertura dos níveis de energia Zeeman dos átomos necessários para o aprisionamento é gerado por um par de bobinas com corrente da ordem de **6,7 A** e são posicionadas na configuração anti-Helmholtz produzindo um gradiente de campo na região central da câmara de 10 Gauss/cm na direção (z) e 5 Gauss/cm na direção (xy). São necessários dois feixes de lasers (aprisionamento e rebombeio) com polarizações circulares opostas σ^+ e σ^-, que

interceptam na região central da AMO, onde o campo magnético varia linearmente com a posição.

Como estamos aprisionando átomos de Rb em uma região central da armadilha, é necessário haver uma boa sobreposição dos lasers usados para aprisioná-los para obtermos a maior densidade possível. Essa sobreposição é monitorada por uma câmara (CCD). As polarizações corretas são obtidas utilizando-se lâminas $\lambda/4$ nos braços da armadilha localizados no plano xy e z, e rombos de Fresnel são responsáveis pela retro-reflexão. Para determinar o número de átomos aprisionados utilizamos uma fotomultiplicadora (calibrada), e as temperaturas das amostras foram obtidas utilizando a técnica de tempo de vôo. Com este sistema experimental aprisionamos aproximadamente uma densidade de 10^{10} átomos/cm^3.

O laser de aprisionamento utilizado é um laser titânio safira (Ti:Safira, coherent - 899) com potência de saída de 700 mW bombeado por um laser de Nd:YVO_4 dobrado (Coherent – Verdi V10) que apresenta uma potência de saída de 10 W. O laser de Ti:Safira é sintonizado abaixo da transição do $5S_{1/2}$ (F=3) $\Rightarrow$ $5P_{3/2}$(F'=4) com comprimento de onda 780,23 nm e dessintonia Δ = -10 MHz para vermelho. Entretanto, devido à presença dos níveis hiperfinos, devemos usar um laser de rebombeio, cuja função é manter o processo cíclico de bombeamento óptico entre os níveis hiperfinos fazendo com que os átomos sempre estejam ressonante com a radiação. Esta freqüência de rebombeio pode ser gerada a partir do laser de aprisionamento quando passa por um modulador eletro-óptico (**MOE**). O laser de rebombeio é dessintonizado -10 MHz em relação à transição $5S_{1/2}$ (F=2) $\Rightarrow$ $5P_{3/2}$(F'=3). A figura 3.3 da uma visão geral da montagem experimental.

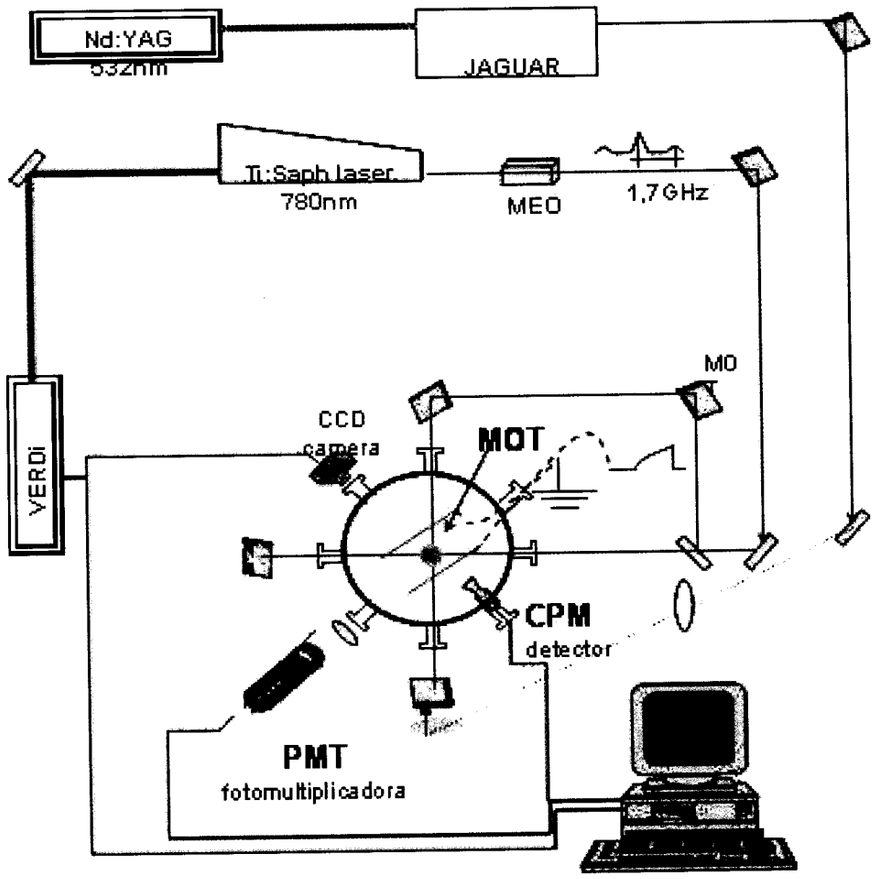

Figura 3.3 Esquema geral da montagem experimental, mostrando os lasers responsáveis pelo funcionamento da armadilha, o laser pulsado (azul), sistema de imagem (câmara CCD) e o detector de íons/eletron.

Os átomos de Rubídio são preparados no estado $5P_{3/2}$ como podemos ver na figura 3.4 que ilustra o posicionamento do laser de aprisionamento e rebombeio, como também as suas respectivas dessintonias (Δ_{Rb}). O átomo de Rb permanece aprisionado em virtude que ele esta sempre ressonante com a radiação. Os átomos depois de aprisionados são excitados para os estados de Rydberg desejado (***nl***). Na figura 3.5. mostramos a excitação dos átomos para os estados de Rydberg através da

transição de um fóton que é realizada usando-se um laser de corante com comprimento de onda sintonizável entre $\lambda = 470$ nm e $\lambda = 485$ nm.

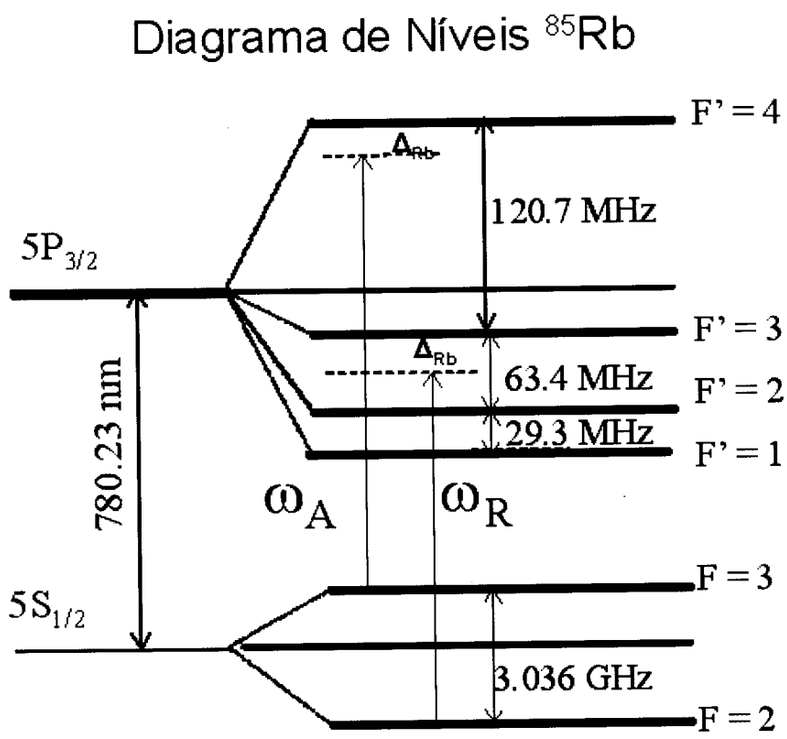

Figura 3.4 Representação esquemática dos níveis atômicos hiperfinos do Rudíbio, onde podemos observar as transições de aprisionamento (ω_A) e rebombeio (ω_R). A dessintonia de aprisionamento do Rb é $\Delta_{Rb} = -10$ MHz.

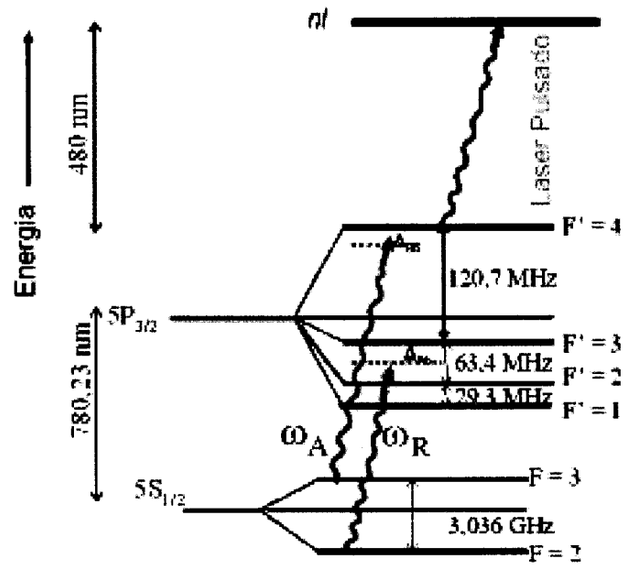

Figura 3.5: Os átomos são excitados para os estados (*nl*) de Rydberg a partir do estado $5P_{3/2}$ através da transição de um fóton. A fotoexcitação para os níveis de Rydberg depende do comprimento de onda do laser pulsado, o qual pode variar entre $\lambda = 470$ nm e $\lambda = 485$ nm.

3.3 Sistema de Excitação.

O sistema de fotoexitação dos átomos é constituído por um laser de corante pulsado (Continuum - Jaguar) bombeado pelo terceiro harmônico de um laser Nd:YAG (*Continuum –Surelite SL-20*) que possui um comprimento de onda de λ = 352 nm; duração temporal 9 ns, taxa de repetição máxima de 20 Hz e energia/pulso de aproximadamente 25 mJ. O laser de corante pulsado é composto por dois estágios (duas cubetas), com mostra a figura 3.6. O primeiro estágio é referente à geração do laser, e o segundo é referente à amplificação do mesmo. Para cada estágio do laser foram usadas proporções diferentes de corantes, onde no primeiro estagio (oscilador) usamos *Coumarin* 480 (0,204 mg /500 ml de metanol), e no segundo estágio (amplificador) usamos *Coumarin* 480 (0,0949 mg /1200 ml de metanol).

Nessa configuração o comprimento de onda do laser de corante pulsado pode variar entre λ =470 nm e λ = 485 nm, possuindo uma potência média de 35 mW. O laser de corante possui uma largura de linha de 0,1 cm^{-1} e transfere de 8% a 10% dos átomos aprisionados para o estado de Rydberg. O elemento seletivo de comprimento de onda é uma grade de difração holográfica de 3600 linhas/mm [7]. Para a sintonia dos comprimentos de ondas há um motor de passo que é operado por um programa *LabView* desenvolvido pelo fabricante. Seu comprimento de onda é calibrado usando um medidor de onda (*Burleigh-modelo: WA 4500*), que também nos permite medir a largura de linha do laser.

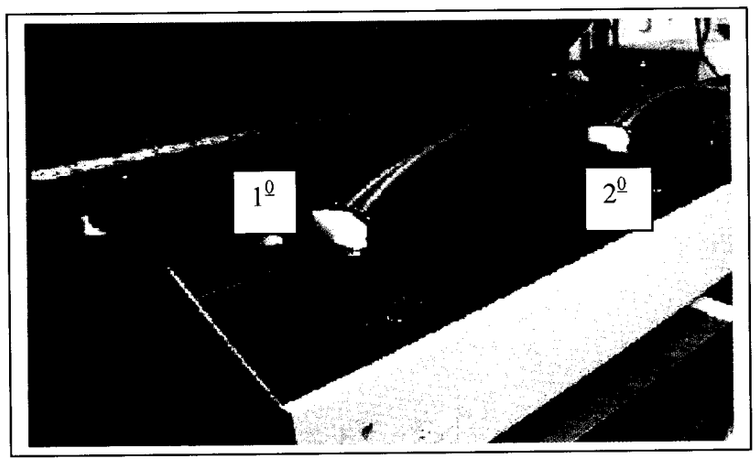

Figura 3.6: Laser corante pulsado; (1) primeiro estágio (oscilador), e (2) segundo estágio (amplificador), seu papel é excitar os átomos que estão no estado $5P_{3/2}$ para o estado de Rydberg selecionado.

Em nosso laboratório a excitação para os estados de Rydberg é tipicamente feita por este laser devido a sua fácil manipulação e principalmente por ser sintonizável em vários comprimentos de onda. Uma das grandes vantagens de usarmos este laser é que podemos variar o seu comprimento de onda durante a

realização de um experimento e obtermos um espectro atômico dos estados de Rydberg do ^{85}Rb, conforme mostramos na figura 3.7. Os átomos são excitados a partir do estado $5P_{3/2}$ para $nS_{1/2}$ *e* nD_J opticamente acessíveis pela transição de um fóton de acordo com a regra de seleção de dipolo.

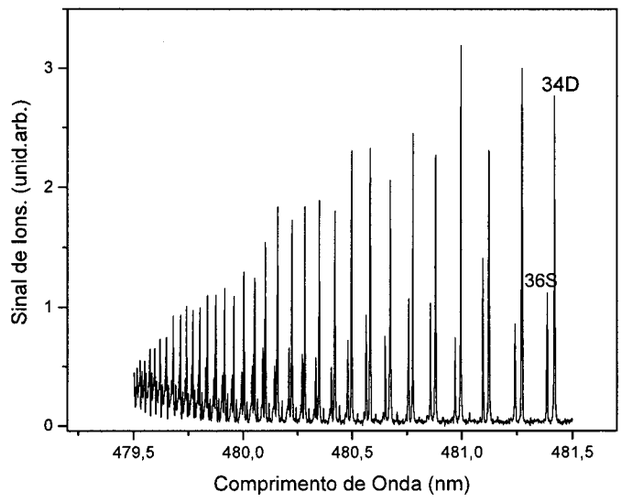

Figura 3.7: Espectro dos estados de Rydberg para o do ^{85}Rb. Átomos são excitados pelo laser pulsado a partir do estado $5P_{3/2}$ para os respectivos estados de Rydberg, $nS_{1/2}$ e nD_J.

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

3.4 Sistema de Detecção

O baixo limiar de ionização dos átomos de Rydberg fazem-os extremamente sensíveis a campos elétricos. Um dos métodos mais sensíveis para detecção de átomos de Rydberg é a técnica do campo seletivo, o qual será explicada na subseção seguinte. Alguns detalhes dos instrumentos usados para gerar o campo elétrico, detecção dos sinais, seqüência temporal e aquisição de dados, constam inclusos no restante desta seção.

3.4.1 Sistema de Ionização por Campo Seletivo.

Uma vez que nós produzimos estados altamente excitados de Rydberg é possível detectá-los de várias formas: por métodos ópticos, ionização por campo ou por diodo termo-iônico e método optogalvânico [10]. O método mais sensível e mais utilizado é o método de ionização por campo. Esse método permite seletividade nos resultados da detecção por que o limiar de ionização depende da energia de ligação. Ou seja, o limiar de ionização dos átomos de Rydberg escalam com $\boldsymbol{n}^{-4}$, onde n é o número quântico principal. Se o deslocamento de energia dos estados de Rydberg na presença de um campo elétrico é ignorado então o campo clássico para a ionização em termos de n é [11],

$$E = \frac{1}{16n^4}. \tag{3.1}$$

Assim que um campo desta ordem é aplicado, os átomos de Rydberg são ionizados e os íons/elétrons resultantes podem ser acelerados e detectados (pelo *microchannel plate detector*). A energia de ligação dos estados de Rydberg não depende somente do número quântico principal $\boldsymbol{n}$, mas também do momento angular $\boldsymbol{l}$ que varia entre diferentes níveis com diferentes subníveis, $\boldsymbol{m_l}$. Uma vez que o limiar

de ionização depende da energia de ligação, os estados excitados podem ser detectados seletivamente. Em particular, ionização por campo pulsado ionizante consiste em aplicar um pulso com um determinado tempo de subida conforme ilustrado na figura 3.8. Em nosso experimento, após a duração temporal do laser pulsado (9 ns), o pulso ionizante é ligado. Os limiares de ionização para os estados *S*, *P* e *D* são diferentes mesmo para o caso de um campo zero. Existe uma pequena diferença do campo de ionização para os estados nD_J e $(n+1)S_{1/2}$ apesar da separação entre estes estados ser grande em um campo zero. Em contraste, existe uma grande separação entre campos necessários para ionizar os estados nD_J e $(n+1)P_J$, apesar da separação em campo zero ser muito menor que a metade da separação $(n+1)S_{1/2}$-nD_J. Então, uma maneira de representar a energia em um campo relativo para o limite de campo zero é usar o número quântico efetivo, n_s. Ou seja, se nós assumirmos que as energias em um alto campo são eventualmente espaçadas, poderemos estimar o valor de n_s para $m_l = 0$ como segue:

$$\begin{aligned}
&(n+1)s \rightarrow n_s = n - 1/2 \\
&nd \rightarrow n_s = n - 1/2 + 1/n \\
&nf \rightarrow n_s = 1/2 + 2/n \\
&nl \rightarrow n_s = n - 1/2 + (l-1)/n \\
&(n+1)p \rightarrow n_s = n + 1/2 - 1/n
\end{aligned} \tag{3.2}$$

Usando estes valores nós podemos calcular o campo necessário para ionizar qualquer estado m = 0. Portanto, podemos reescrever a eq. 3.1 considerando a eq. 3.2 para obtemos a expressão.

$$E = \frac{1}{16 n_s^4} \tag{3.3}$$

Em ionização adiabática o que é importante é a ordem dos níveis de energia de campo zero e não precisamente a energia de campo zero.

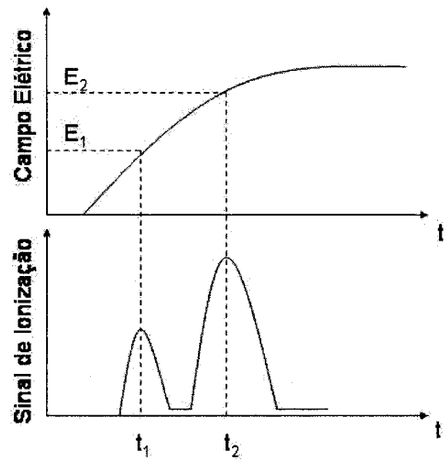

Figura 3.8: Esquema de ionização por campo dos estados de Rydberg. O gráfico no topo mostra a dependência do campo elétrico $\boldsymbol{E}$ com o tempo, iniciado depois dos estados de Rydberg serem excitados pelo pulso de luz. Para um t_1 e t_2, o campo elétrico alcança o limiar da ionização E_1 e E_2 dos estados de Rydberg $\boldsymbol{n_1}$ e $\boldsymbol{n_2}$. O gráfico abaixo corresponde ao sinal de ionização dos níveis $\boldsymbol{n_1}$ e $\boldsymbol{n_2}$.

A ionização por campo elétrico usa qualquer pulso elétrico de subida rápido (pulso quadrado) ou um pulso elétrico de subida lento (resolvido no tempo) e sua utilidade depende do experimento a ser realizado. O pulso elétrico de subida rápido é usado para detectar diferentes estados quando a freqüência do laser é varrida. Por outro lado, um pulso de subida lento é mais eficiente para estudar colisões. Com o pulso de subida lento é possível detectar estados de Rydberg que têm diferentes energias de ligação. Esta forma de pulso é útil também para estudar o comportamento das colisões atômicas, isto por que há uma diferença de energia dos átomos antes e depois da colisão. A figura 3.8 mostra o esquema da ionização por campo seletivo dos estados de Rydberg $\boldsymbol{n_1}$ e $\boldsymbol{n_2}$ usando um campo elétrico $\boldsymbol{E}$ variando no tempo. Depois dos átomos serem excitados para os estados de Rydberg pelo laser pulsado, um campo elétrico $\boldsymbol{E}$ na forma de rampa é aplicado. O campo $\boldsymbol{E}$ alcança o limiar da ionização $\boldsymbol{E_1}$ e $\boldsymbol{E_2}$ dos estados $\boldsymbol{n_1}$ e $\boldsymbol{n_2}$ para diferentes tempos $\boldsymbol{t_1}$ e $\boldsymbol{t_2}$

respectivamente. Por esta razão um pico resolvido no tempo surge para cada estado no sinal de ionização. Este método de detecção de estados de Rydberg é simples, sensível e seletivo.

Nós utilizaremos esta técnica de detecção para estudarmos colisões atômicas envolvendo os estados de Rydberg $nS_{1/2}$, nP_J e nD_J. Com esta técnica de ionização conseguimos distinguir efeitos colisionais antes e após a colisão obtendo uma seletividade nos estados atômicos envolvidos na colisão. Mas gostaríamos de ressaltar que devido aos potenciais de ionização dos estados $nP_{1/2}$ e $nP_{3/2}$ serem próximos, estes dois estados não podem ser distinguidos ao mesmo tempo. Na aplicação de um campo elétrico da ordem do campo interno do átomo de Rydberg haverá superposição do potencial de Coulomb atômico e do potencial de rampa linear do campo aplicado que resultará numa estrutura de potencial como "ponto de sela", por meio do qual o elétron de Rydberg pode escapar do caroço iônico, e ocorrer ionização. A mais simples aproximação para ionização por campo é estabelecer que os estados acima do ponto de sela serão ionizados e que os estados abaixo serão estáveis. Na figura 3.9 mostramos como o potencial pode ser deformado e criado o ponto de sela. Uma consideração importante que devemos ressaltar diz respeito ao problema de detecção de átomos de Rydberg por ionização por campo pulsado. Ou seja, entender como os estados evoluem à medida que o campo é aplicado. Uma vez que o campo aumenta lentamente, o estado segue um caminho adiabático [12], significando que nenhum dos níveis é cruzado. Por outro lado, se o campo aumenta rapidamente, o átomo pode atravessar diabaticamente os cruzamentos evitados. Assim, o limiar de campo para ionização pode diferir nos dois casos. No entanto, no nosso trabalho lidamos apenas com campos baixos e ionização em regime adiabático.

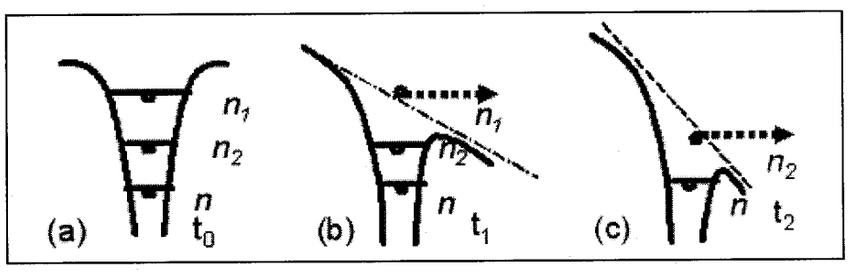

Figura 3.9: Esquema do potencial atômico e campo aplicado: (a) em t = 0, estados excitados n_1 e n_2 com suas respectivas energias de ligação E_1 e E_2 na ausência de campo elétrico. (b) em t_1, o elétron no estado de Rydberg n_1 sentirá a presença do campo ionizante primeiro, e (b) logo depois, em t_2, o estado n_2.

3.4.2 Gerando Campo Elétrico Ionizante.

Como o propósito deste trabalho é estudar colisões atômicas o método mais eficaz para detecção conforme vimos anteriormente é o método por campo ionizante. Algumas fontes de alta tensão não fornecem um pulso na forma de rampa mas sim quadráticos. Para contornar este pequeno problema nós utilizamos artifícios de eletrônica básica. Em nosso sistema o pulso ionizante em forma de uma "rampa" é produzido por dois capacitores de 47,2 nF colocado em série na saída da um gerador de pulso AVTECH modelo AVRH 3-PS-PN (com saída de 3 KVolts). O pulso ionizante é aplicado em uma das grades que está no centro da armadilha. (figura 3.10). A nuvem atômica de átomos frios é formada entre duas grades de metal que estão separadas por 12 mm, onde temos uma região de campo zero o qual é importante para evitar efeito Stark. Aplicamos um pulso de alta tensão para ionizar os átomos de Rydberg na grade direita (figura 3.10). Esse pulso tem um tempo de subida variável, "*rise time*" (ver ionização) de 0.25 μs a 2,5 μs e sua tensão de pico de 3 KVolts.

Tal pulso ioniza os átomos como também acelera na direção da grade aterrada (dependendo da condição experimental nesta outra grade podemos aplicar um campo

estático com o intuito de vermos colisões ressonantes). Os íons (ou elétrons) formados que passam pela grade serão atraídos pelo campo do detector *CEM* (*Channel electron multiplier* –alimentado por uma tensão de 3 KV) o qual se encontra o mais próximo de uma das grades, veja figura 3.10. Para haver seleção de estados é necessário usar elétrons devido a sua pequena massa e curto tempo de vôo.

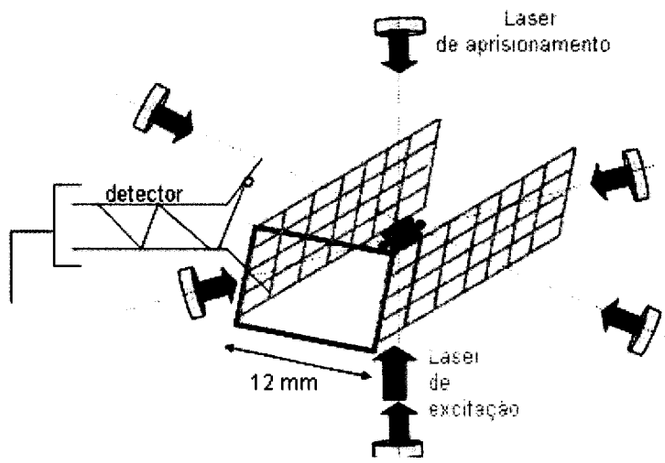

Figura 3.10: Esquema do posicionamento das grades e detector no interior da câmara de aprisionamento. A grade direita é usada para a ionização e a esquerda apenas utilizamos quando pretendemos estudar colisões ressonantes na presença de um campo estático

Por fim basta salientar que também faz parte deste trabalho estudar colisões atômicas na presença de campo elétrico estático como citamos no Capítulo 2 . O caráter de estados ligados depende das condições de campo eletrônico na região de excitação. Na presença de campo estático e num regime de alta densidade é possível que colisões entre átomos de Rydberg envolvendo transferência de excitação tornem-se ressonantes e esta é uma das situações que consideraremos neste trabalho. Portanto, em uma destas grades (à esquerda) nós aplicaremos um campo elétrico

estático para estudar colisões ressonantes; a outra nós utilizamos para aplicar o campo elétrico de ionização.

Para aplicarmos o campo elétrico estático usamos uma fonte *Minipa* (*MCP 303. DI*) de baixa voltagem variável (0 V a 30 V-3 A). Esta baixa voltagem do campo estático é suficiente porque permite, via efeito Stark, o levantamento da degenerescência angular dos estados de um determinado número quântico ***n***. Ao contrário, para ionizar, precisamos de alta tensão, como foi descrito anteriormente.

Técnicas espectroscópicas utilizam vários métodos para medir a distribuição de energia cinética dos átomos ou moléculas. Quando lidam com partículas carregadas, a energia cinética ou momento podem ser medidos eletronicamente. Em nosso trabalho a detecção dos íons (elétrons) é baseada na técnica de campo ionizante. Esta técnica considera o tempo que as partículas demoram para atingir o detector após serem ionizadas. De um modo geral temos a mesma interpretação física ilustrada na figura 3.9, ou seja, os respectivos tempos t_1 e t_2 que ocorrem a ionização correspondem ao tempo de chegada ao detector. Estes tempos t_1 e t_2 correspondem à distância percorrida pelas partículas ionizadas (íons/elétrons) no interior da câmara de aprisionamento até o detector. Ou seja, em t_1 teremos um estado atômico que será detectado primeiro em decorrência de possuir menor energia de ionização e em t_2 teremos outro estado atômico detectado posteriormente por possuir uma energia maior. Este processo pode ser visto no sinal de elétrons resolvido no tempo obtido em nosso laboratório (figura 3.11). Nós estudamos uma colisão experimental do tipo $nS_{1/2} + nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n\text{-}1)P_{3/2}$ na ausência de campo elétrico estático. Relembrando ao leitor que colisões com campo externo ressonantes foram introduzidas no Capítulo 2. Portanto, se considerarmos como exemplo n = 32, obteremos uma colisão: $32S_{1/2} + 32S_{1/2} \rightarrow 32P_{3/2} + 31P_{3/2}$.

Neste exemplo de colisão podemos utilizar a Eq. 3.2 e estimar o campo necessário para ionizar o estado $32P_{3/2}$, obtendo $\boldsymbol{E_1}$ = 328,09 V/cm em t_1 = 0,46 μs, e para o estado $32S_{1/2}$ obtemos um campo de $\boldsymbol{E_2}$ = 371,38 V/cm em t_2 = 0,61 μs.

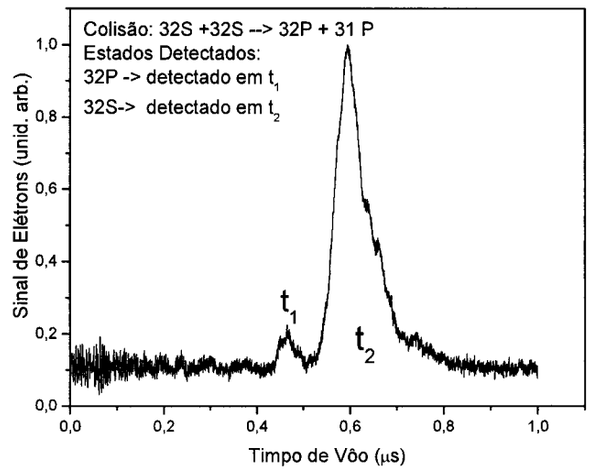

Figura 3.11: Sinal de elétrons resolvido no tempo onde são observados os diferentes estados atômicos antes da colisão e após colisão, utilizando a técnica de ionização por campo seletivo. Os sinais de elétrons resolvido no tempo t_1 e t_2 correspondem aos estados $32P_{3/2}$ e $32S_{1/2}$.

3.5 Esquema Temporal.

O esquema temporal realizado neste experimento está esquematizado na fig. (3.12). A detecção dos elétrons é realizada após o final do pulso de ionização em intervalos temporais durante os quais os lasers de aprisionamentos estão ligados. Não foi notado nenhuma diferença em termos de amplitude e largura temporal no valor do sinal de elétrons quando os lasers de aprisionamentos eram desligados durante o experimento. Com os lasers de aprisionamento ligados (fig. 3,12 (a)), o laser pulsado é acionado e atinge a nuvem atômica excitando uma fração de átomos aprisionados para os estados ($nS_{1/2}$, nP_J ou nD_J) de Rydberg (fig. 3.12 (b)). Depois do processo de excitação ressonante por um fóton a partir do estado nS/nD_J ou nP_J, os átomos são

ionizados pelo campo (fig. 3.12 (c)). Após a ionização os íons (elétrons) serão coletados por um detector e serão discriminados pelo sinal resolvido no tempo (fig.3.12.d). O sinal de íons (elétrons) resolvido no tempo na figura 3.11 é obtido realizando esta seqüência temporal (fig. 3.12).

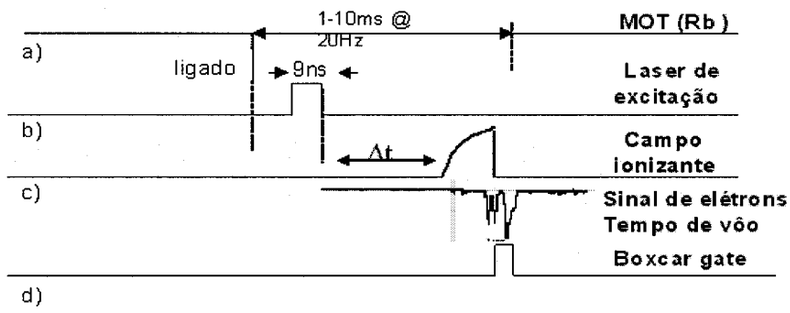

Figura 3.12. Esquema temporal dos experimentos envolvendo produção de átomos de Rydberg. A ionização e a detecção do sinal de elétrons. 3.a) lasers de aprisionamentos ligados, 3.b) laser de excitação, 3c) campo ionizante: Δt variável entre excitação e detecção. 3.d) sinal de elétrons, antes e depois da colisão.

Toda a seqüência é sincronizada por dois geradores de atraso (*delay generate*), o delay-1 envia um sinal para o laser pulsado e para o segundo gerador de atraso, constituindo o sinal de trigger, que é basicamente um sinal TTL varia de 5 V para 0 V, permanecendo em 0 V por 20 μs e se repetindo a uma taxa de 10Hz a 20 Hz, que é o limite do laser Nd: YAG. Após aproximadamente 158,7 μs o pulso de luz é emitido do laser pulsado, atingindo a nuvem de átomos frios, produzindo os estados de Rydberg.

O segundo gerador de atraso delay-2 controla o gerador de pulso de alta tensão (Fonte: AVTECH modelo AVRH 3-PS-PN) que é responsável pela ionização, ou seja, seu papel é fornecer o atraso entre excitarmos e detectarmos os íons (elétrons). Tanto os sinais de íons (elétron, provenientes do osciloscópio e do *boxcar*) podem então ser observados e salvos pelos programas de aquisição dos dados para

subseqüentemente serem analisados. O sinal proveniente do detector de íons é coletado por um osciloscópio digital (TEKTRONIKS - TDS), que é conectado ao integrador boxcar responsável em realizar médias, amplificar o sinal e integrá-lo. Também há uma placa *GPIB (General Purpose Interface Bus)* através da qual podemos salvar os dados em um *PC* para serem então analisados. Na realização destes experimentos nós utilizamos um programa *LabView* para controlar e coletar os dados; todos os programas foram desenvolvidos por nós.

Todos os sinais são salvos e coletados através de uma placa de aquisição de dados (*National Instruments, Model BNC 2090*), que é parte responsável pela comunicação com o software de aquisição dos dados (linguagem LabView). Esta placa de aquisição permite a comunicação entre os equipamentos de aquisição dos sinais medidos e o computador. A figura 3.13 mostra uma representação esquemática do sistema de detecção e aquisição de dados do nosso experimento.

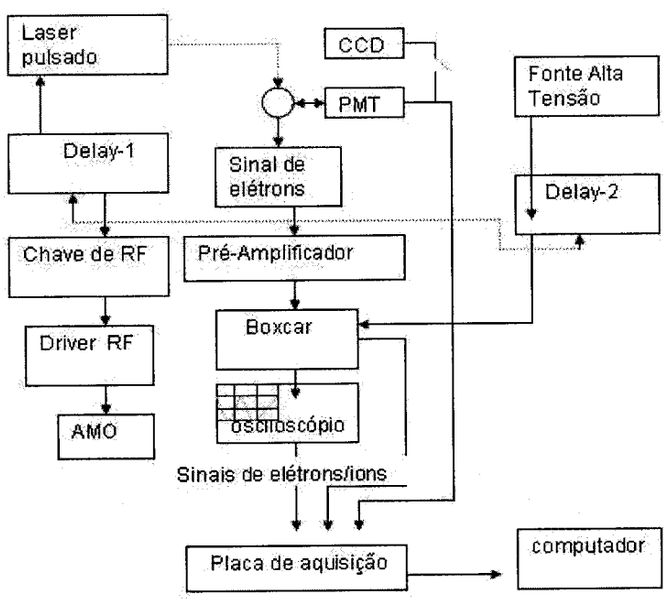

Figura 3.13: Esquema dos sistemas de detecção e aquisição de dados.

Bibliografia

[1] E. L., M. Prentiss, A. Cable, S. Chu, D. E. Pritchard, Phys. Rev. Lett. **59**, 2631 (1987).

[2] C. Monroe, W. Swann, H. Robson and C. Wieman, Phys. Rev. Lett. **65**, 1571 (1990).

[3] P. F. Griffin,K .J Wetherill, and C .S .Adams, Rev. Sci. Instrum. **76**, 093102 (2005).

[4] K. M. F. Magalhães, *Medidas do Tempo de Vida de Estados de Rydberg*, Dissertação de mestrado, ISFC-USP (1999).

[5] R. A. D. Zanon, *Estudo de Colisões Frias Envolvendo Mudança de Estado Eletrônico em Rb*, Tese de Doutorado, IQSC-USP (2000).

[6] A. L de Oliveira, *Estudos em Átomos de Rydberg Frios*, Tese de Doutorado, USFCAR, (2001).

[7] P. Ewart, Opt. Commun., vol. 55 pp.124, (1985)

[8] A. R. Striganov and N. S. Sventitskii, *Tables od spectral of neutral and ionized atoms*, IFI/Plenum, (1968).

[9] N. J. Dovichi, D. S. Moore and R. A. Keller, Appl. Opt. Vol. 21, pp 1468, (1982).

[10] R. F. Stebbing and F. B. Dunning, *Rydberg States of Atoms and Molecules*, Cambridge University Press, (1983).

[11] T. F. Gallagher, Rydberg Atoms, Cambridger University Press, Cambridge (1994).

Capítulo 4

Colisões Com Átomos de Rydberg Frios Controladas por Campo Elétrico

4.1 Introdução

Os átomos de Rydberg são irresistíveis para se estudar colisões por algumas razões: i) Estes átomos são muitos grandes, com raio orbital $\sim n^2 a_0$ e seção de choque $\sigma \sim n^4$; ii) Também são muito sensíveis a campos externos, o que permite ajustar a energia dos estados envolvidos em uma colisão; iii) A diferença de energia entre os estados é muito pequena, possibilitando encontrar estados que permitam colisões envolvendo transferência de energia. As interações entre átomos Rydberg podem ser divididas em duas categorias [1], uma em que o átomo interage com o parceiro neutro (podendo ser um átomo ou uma molécula no estado fundamental) e a outra onde ele interage separadamente com uma partícula carregada ou outro átomo de Rydberg. Estas interações diferem entre si pelo seu alcance. No primeiro caso, por exemplo, a colisão esta sujeita a um potencial de curto alcance, que resulta de uma

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

interação do tipo dipolo-dipolo induzido. No segundo caso as interações envolvidas estão sujeitas a um potencial de longo alcance.

Em nosso trabalho estamos interessados nesse último caso. Em particular nos interessamos por colisões com transferência de energia; esta ocorre quando dois átomos colidem e durante o processo colisional um deles perde energia interna, que é ganha pelo outro [2]. Em geral colisões entre átomos ou moléculas que estão em baixos estados excitados não podem ocorrer de forma ressonante, isto por que os espaçamentos entre os níveis de energias são grandes e não permitem igual transferência de energia [3]. Na seção 2.3 do Capítulo 2 nós vimos um exemplo de colisão na presença de um campo elétrico apenas para que o leitor se familiarizasse com os conceitos físicos envolvidos em tal processo. Neste Capítulo estudaremos a evolução temporal de átomos de Rydberg em função da separação energética entre o canal de entrada e saída de colisão utilizando um campo elétrico estático. Os resultados experimentais obtidos neste Capítulo serão comparados com o modelo semi-clássico desenvolvido por nós no Capítulo 2 .

4.2 Dependência com o Campo Elétrico.

Colisões com transferência de energia têm sido estudadas ao longo dos anos em átomos de Rydberg [4]. Duas razões para isso são os grandes momentos de dipolo encontrado nestes átomos, e a sua rica estrutura Stark. A velocidade relativa característica dos átomos colidindo determina o tempo de colisão e correspondentemente a largura da ressonância [5]. Isto faz com que sistemas de gases de Rydberg frios sejam promissores candidatos na aplicação de informação quântica como foi sugerido usando a interação de dipolo-dipolo [6,7]. Todos estes fenômenos colisionais podem ser estudados teoricamente ou experimentalmente em laboratório.

Em poucas palavras, o processo estudado neste Capítulo pode ser descrito da seguinte maneira: dois átomos de Rydberg *nl* (^{85}Rb) colidem na presença de um campo elétrico estático, e podem originar, devido à colisão dois átomos de Rydberg em estados distintos, ou seja:

$$nP_{3/2} + nP_{3/2} \rightarrow nS + (n+1)S\,. \tag{4.1}$$

No nosso caso $n = 32$, o qual teremos o seguinte processo colisional.

$$32P_{3/2} + 32P_{3/2} \rightarrow 32S_{1/2} + 33S_{1/2}\,. \tag{4.2}$$

Este processo de transferência de energia é o mesmo estudado no Capítulo 2, mas com algumas peculiaridades: não há somente um pico ressonante como vimos anteriormente, mas existem três picos de ressonância. As três ressonâncias surgem devido ao levantamento da degenerescência do momento angular do estado $32P_{3/2}$, as quais tem uma degenerescência na ausência do campo estático. No presente caso a degenerescência é aberta e observamos três canais colisionais para as diferentes combinações de m_j, respectivamente $|m_l| = 1/2 + 1/2$, $|m_j| = 1/2 + 3/2$, $|m_j| = 3/2 + 3/2$. O deslocamento Stark desses níveis de energia pode ser calculado usando a diagonalização da matriz dada por Zimmerman [8] e a polarizabilidade dos estados envolvidos pode então ser determinada. Na figura 4.1 mostramos um diagrama esquemático contendo o valor das energias dos estados envolvidos na colisão (eq. 4.2) em função do campo elétrico e as posições onde ocorrem as ressonâncias.

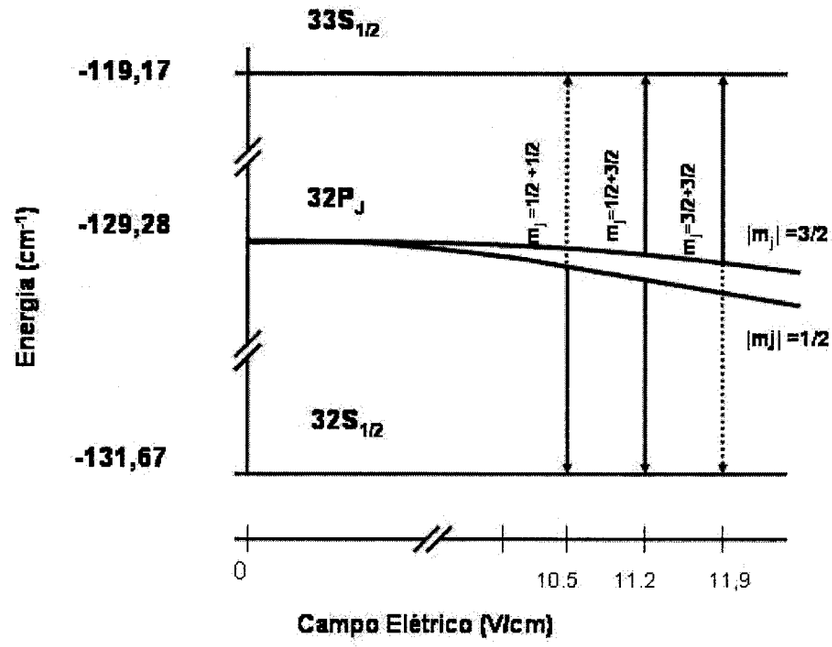

Figura 4.1: Diagrama esquemático com o valor dos níveis de energia para o átomo de ^{85}Rb e o processo de transferência de energia ressonante em função do campo elétrico. As setas apenas indicam as posições de ressonâncias para as respectivas combinações de m_j. O cálculo das energias consta na ref.[8].

As colisões estudadas neste Capítulo merecem uma especial atenção, isto devido ao fato que elas só ocorrem na presença de um campo elétrico ressonante. Na figura 4.2 temos o sinal de elétrons resolvido no tempo onde consta o sinal de ionização dos átomos de Rydberg para um campo elétrico de $E \approx 6.7$ *V/cm* fora da ressonância (curva preta), este campo é utilizado para quebrarmos a regra de transição por dipolo, permitindo haver transições $nP_J \rightarrow nP_J$. Podemos observar que ao estarmos fora da ressonância não há picos de colisão, não havendo portanto átomos no estado $32S_{1/2}$. Mas ao nos aproximarmos da ressonância com $E \approx 10.5$ *V/cm* (curva vermelha) obtemos o sinal proveniente da colisão.

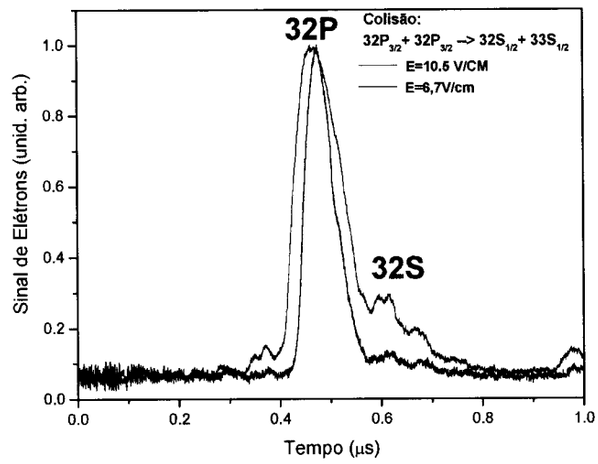

Figura 4.2: Sinal de elétrons resolvido no tempo obtido após um tempo de interação de 8 μs, os estado $32P_{3/2}$ e $32S_{1/2}$ estão assinalados. A curva preta representa o sinal de elétrons para um campo elétrico estático de $E \approx 6.7\ V/cm$. Observamos claramente o estado $32P_{3/2}$, mas não ocorre colisão com transferência de energia para o estado $32S_{1/2}$. Ao contrário, ao aplicarmos um campo ressonante obtemos um sinal da colisão. A curva vermelha representa a colisão na presença de um campo elétrico estático de $E \approx 10,5\ V/cm$, onde ocorre a colisão ressonante para $m_j = 1/2 + 1/2$. O sinal dos estados $32P_{3/2}$ e $32S_{1/2}$ é evidente.

Conforme podemos constatar na figura 4.2 o campo elétrico exerce um papel importantíssimo nas colisões envolvendo transferência de energia, uma vez que na sua ausência não obtemos o sinal da colisão. O pico de ressonância obtido na figura 4.2 ocorre para um campo elétrico de $E \approx 10,5V/cm$ para $m_j = 1/2 + 1/2$, porém outros picos podem ser determinados variando o campo elétrico aplicado. Na figura 4.3 temos a população do estado $32S_{1/2}$ em função do campo elétrico aplicado para um tempo de interação de 8μs. Os três picos que aparecem são devido ao levantamento da degenerescência do momento angular do nível $32P_{3/2}$, as quais tem uma degenerescência na ausência do campo. Ao variarmos o campo elétrico estático no tempo, obtemos os três picos de ressonâncias. Contudo, devemos lembrar que o sinal mostrado nesta figura está sobre um sinal constante de fundo (figura 4.3 (a)) de

população em $32S_{1/2}$ que foi removido (figura 4.3 (b)). Este sinal removido deve sua origem ao decaimento espontâneo e induzido por radiação de corpo negro a partir da população em $32P_{3/2}$.

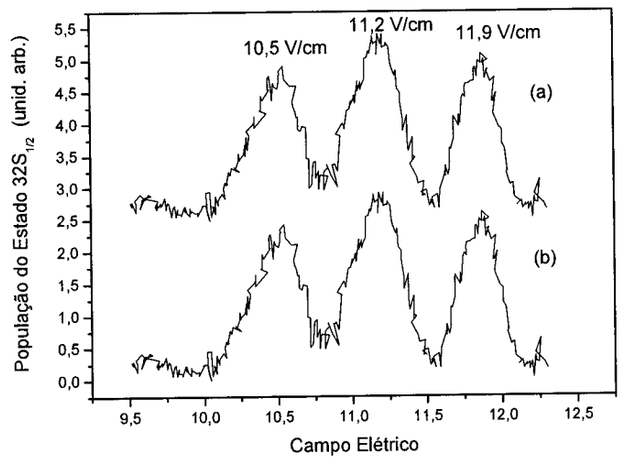

Figura 4.3: População do estados $32S_{1/2}$ em função do campo elétrico estático aplicado, para um tempo de interação $\Delta t = 8\mu s$. Os três picos referem-se as ressonâncias para os diferentes valores de m_j. $|m_j| = 1/2 + 1/2$, $|m_j| = 1/2 + 3/2$, $|m_j| = 3/2 + 3/2$. Na figura 4.3 (a) não removemos o decaimento espontâneo nem radiação de corpo negro. Na figura 4.3 (b) o sinal de fundo de população em $32S_{1/2}$ foi removido ..

Na figura 4.3 podemos ver o papel marcante do campo elétrico nas colisões com transferência de energia ressonante. Conforme o campo elétrico aproxima-se do ponto exato onde ocorre a ressonância, cresce o número de átomos $32S_{1/2}$ proveniente da colisão. Como vimos no Capítulo 2, neste tipo de colisão há conservação de energia, e isto ocorre quando estamos próximos a ressonância. As três ressonâncias são devido às projeções de m_j na direção do campo elétrico, o que leva a diferentes energias na presença do campo, separando assim os potenciais. Nós devemos observar na figura 4.3 que há dois parâmetros importantes. O primeiro é posição do máximo de ressonância para cada canal, o outro é a largura destas. Os

valores obtidos de campo para os máximos experimentais e largura de ressonâncias mostram-se em boa concordância com a observação experimental (ver tabela 4.1) de Lowell [9]. Estes respectivos valores também estão de acordo com o nosso cálculo considerando o efeito Stark.

Inicial $32P_{3/2}$	$*\|m_j\| = 1/2 + 1/2$	$*\|m_j\| = 1/2 + 3/2$	$*\|m_j\| = 3/2 + 3/2$
E (V/cm) Ref. [9]	10,6	11,2	11,9
E (V/cm) Este trabalho	10,5	11,2	11,9

Tabela 4.1: Campo elétrico ressonante para interações de dipolo-dipolo $nP_{3/2} + nP_{3/2} \rightarrow nS_{1/2} + (n+1)S_{1/2}$, $*|m_j|$ corresponde a posição de ressonância.

4.3. Estudo da Dinâmica de População em Função do Campo Elétrico Estático.

Nesta seção apresentaremos um estudo da evolução temporal do processo de colisão ressonante em função do campo elétrico estático. Este estudo foi realizado para o primeiro pico de ressonância nos processos envolvendo os estados $|m_j| = 1/2 + 1/2$ descritos na figura 4.3 com o intuito de isolá-lo e evitar contribuições dos demais picos ao nosso sinal. Desta forma analisaremos a evolução temporal da população do estado $32S_{1/2}$ em 8 situações de campo elétrico: 8,33 V/cm, 10,16 V/cm, 10,25 V/cm, 10,29 V/cm, 10,33 V/cm, 10,35 V/cm, 10,43 V/cm e 10.49 V/cm. Variando o campo elétrico aplicado poderemos estudar a dependência temporal em função da diferença de energia entre os canais de entrada e saída e entendermos de uma melhor forma possível a dinâmica de colisão. Nas figuras 4.4 e 4.5 mostramos a evolução temporal da população do estados $32S_{1/2}$ para as situações consideradas.

A partir das figuras 4.4 e 4.5, podemos observar que a evolução da população $32S_{1/2}$ possui um comportamento similar para as oito situações, apresentando um decaimento exponencial após atingir um valor máximo. Em compensação observamos (figura 4.4(a)) que conforme nos aproximamos da ressonância há um deslocamento do ponto de máximo para tempos curtos em torno do campo elétrico igual a 10.49 V/cm conforme vemos na figura 4.5(h).

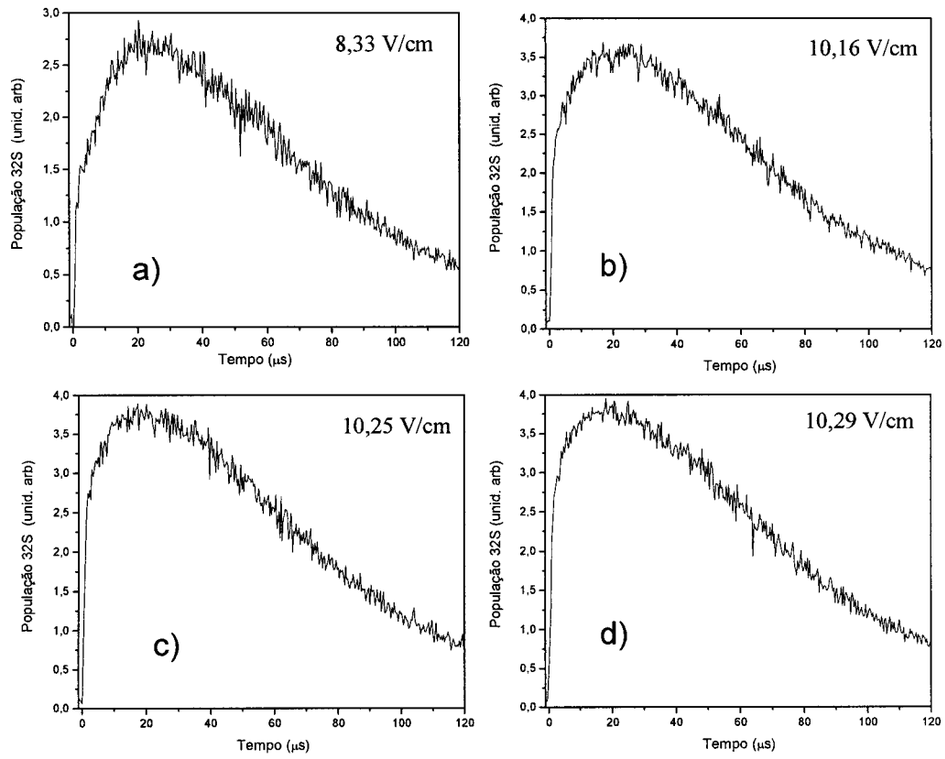

Figura 4.4: Evolução temporal para diferentes valores de campo elétrico para o caso $|m_j| = 1/2 + 1/2$. Os respectivos valores de campo elétrico aplicado são: a) 8,33 V/cm, b) 10,16 V/cm, c) 10.25 V/cm e d) 10.29 V/cm. Observe que há um deslocamento do pico da curva no tempo a medida que nos aproximamos da ressonância.

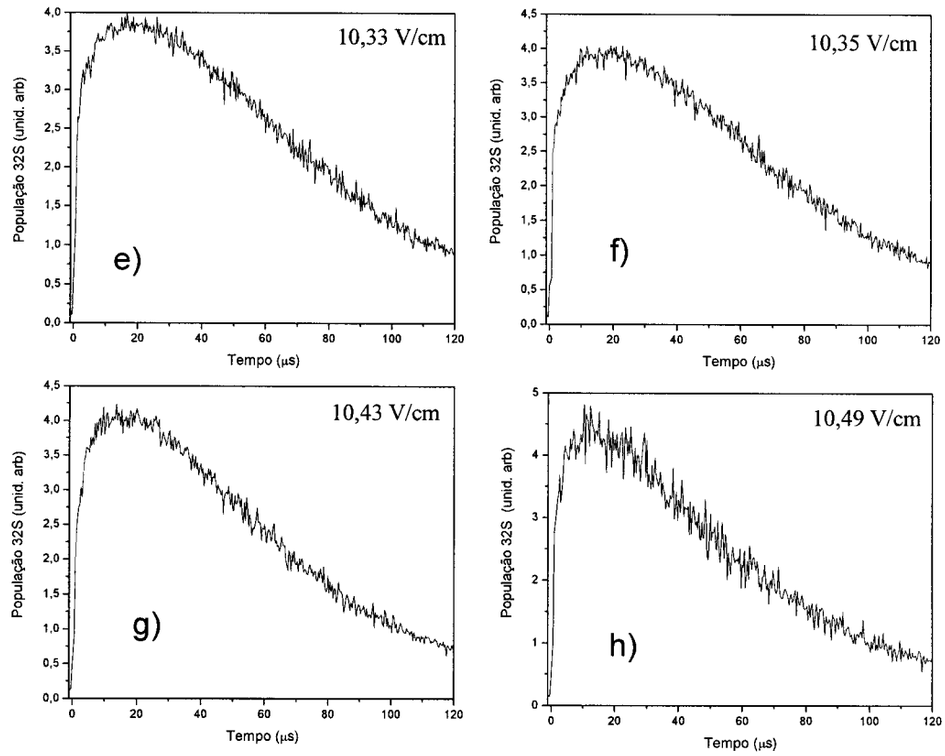

Figura 4.5: Evolução temporal para diferentes valores de campo elétrico para o caso $|m_j|$ = 1/2 + 1/2. e) 10,33 V/cm, f) 10,35 V/cm, g) 10,43 V/cm e h) 10,49 V/cm. Observe que há um deslocamento do pico da curva no tempo, a medida que os valores de campo aproximam-se do valor campo ressonante 10,5 V/cm.

Ao aplicarmos um campo elétrico vimos que ele influência na dinâmica de população, ou seja, para vários valores de campo elétrico aplicado variamos a diferença de energia entre os canais de entrada e saída da colisão, e isto reflete diretamente na probabilidade de haver ou não transição para outros estados durante a colisão. Contudo, notamos que existe população em $32S_{1/2}$ mesmo para um campo onde a colisão não é ressonante (8.33 V/cm) fig 4.4 (a). O mecanismo responsável por esta população deve envolver o decaimento radiativo e a redistribuição de população entre os níveis atômicos devido à radiação de corpo negro.

Consideraremos um modelo simplificado de equações de taxa para 3 níveis ($32S_{1/2}$, $33S_{1/2}$ e $32P_{3/2}$) envolvendo decaimento e redistribuição devido à radiação de corpo negro [10]:

$$\begin{aligned}
\frac{dN_{32P}}{dt} &= -\frac{N_{32P}}{\tau_{32P}} - \gamma_{32P32S}N_{32P} - \gamma_{32P33S}N_{32P} + \gamma_{32S32P}N_{32S} + \gamma_{33S32P}N_{33S} \\
\frac{dN_{33S}}{dt} &= -\frac{N_{33S}}{\tau_{33S}} - \gamma_{33S32P}N_{33S} + \gamma_{32P33S}N_{32P} \\
\frac{dN_{32S}}{dt} &= -\frac{N_{32S}}{\tau_{32S}} - \gamma_{32S32P}N_{32S} + \gamma_{32P32S}N_{32P}
\end{aligned} \tag{4.3}$$

onde N_{33S}, N_{32P} e N_{32S} são as populações dos respectivos estados, τ_i é o tempo de vida radiativo do estado i enquanto γ_{ij} (com $\gamma_{ij} \neq \gamma_{ji}$) envolve os acoplamentos estes os diferentes estados considerando absorção e emissão (espontânea e estimulada) da radiação de corpo negro. Na fig. 4.6 mostramos a comparação deste modelo com a população obtida para 8.33 V/cm. Os valores dos parâmetros que serão considerados na eq. 4.3 constam na tabela 4.2 e 4,3.

Estados	Energia (u.a.)	Tempo de vida (μs)
$32S_{1/2}$	- 0,0006000	37,4
$32P_{3/2}$	- 0,0005801	61,6
$33P_{3/2}$	- 0,0005606	66,6

Tabela 4.2: Contendo valores dos níveis de energia e tempo de vida dos respectivos estados: $32S_{1/2}$, $32P_{3/2}$ e $33P_{3/2}$.

O acoplamento γ_{ij} entre diferentes estados considerando a absorção e emissão (espontânea e estimulada) é representado por:

$$\gamma_{ij} = A_{ij}(\bar{n} + \theta_{ij}) \tag{4.4}$$

onde $\bar{n}$ é o número de ocupação por modo do campo de radiação para uma temperatura T e freqüência de transição v, dado por: $\bar{n} = 1/e^{hv/Kt} - 1$, e ;

$$\theta_{ij} = \begin{cases} 1 \rightarrow E_i > E_j \\ 0 \rightarrow E_i < E_j \end{cases}$$

Os coeficientes A_{ij} também conhecidos como Coeficientes A de Einstein, podem ser calculados com a mecânica quântica calculando-se o acoplamento entre o campo da luz e o átomo. Ele é dado por:

$$A_{n'l',nl} = \frac{4e^2\omega^3}{3\hbar c^3}\frac{l_{\max}}{2l+1}\left|\langle n'l'|r|nl\rangle\right|^2 \tag{4.5}$$

onde: $\omega_{nl,n'l'} = (W_{n'l'} - W_{nl})/\hbar$. O estado $|nl\rangle$ possui energia maior e l_{max} é o maior valor entre l e l'. A inserção de outros estados, estendendo o modelo para vários níveis, é direta.

Na tabela 4.3 nós temos os valores de acoplamentos calculados para os respectivos estados em questão. O valor do coeficiente A_{32P32S} de Einstein para a transição considerada é dada por: $A_{32P\text{-}32S} = 156s^{-1}$.

γ_{32P32S}	7545 s^{-1}
γ_{32P33S}	6927 s^{-1}
γ_{32S32P}	2463 s^{-1}
γ_{33S32P}	2357 s^{-1}

Tabela 4.3: Valores dos acoplamentos entre os diferentes estados: $32S_{1/2}$, $32P_{3/2}$ e $33P_{3/2}$.

Para resolvermos as equações acopladas 4.3, devemos fazer algumas considerações iniciais, tais como $N_{32P}(0) = 1$(ou uma fração menor, caso se queira

"mudar" a densidade); $N_{32S}(0) = 0$; $N_{33S}(0) = 0$. E utilizando o Método de Euller (primeira derivada) nós resolvemos cada uma das respectivas equações. O mesmo procedimento será adotado para outros capítulos quando estudarmos processos de colisões diferentes.

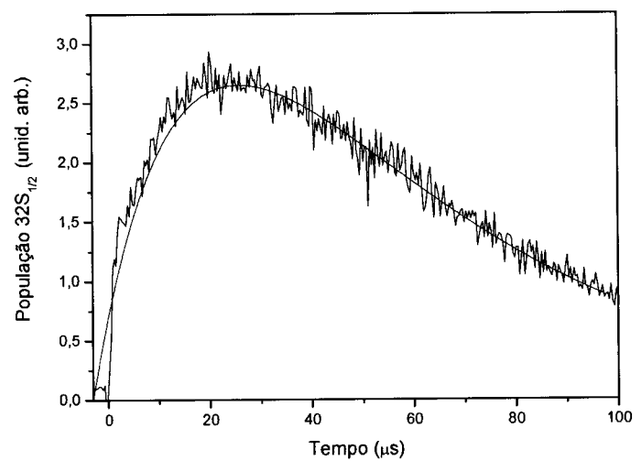

Figura. 4.6: População no estado $32S_{1/2}$ em função do tempo. A linha preta é a curva experimental para um campo de 8.33V/cm e a vermelha é a curva do modelo de taxa que considera decaimento e redistribuição de população devido à radiação de corpo negro.

Acreditamos que um modelo mais realista deverá considerar mais níveis para reproduzir melhor a curva experimental. Como podemos, então, eliminar a influência do decaimento e da radiação de corpo negro dos dados apresentados nas figuras 4.4 e 4.5? Bem, o campo elétrico estático causa uma perturbação desprezível na posição energética dos níveis e seus elementos de dipolos. Desta forma vamos considerar que sua contribuição ao sinal no estado $32S_{1/2}$ *é* constante e a removemos das demais medidas em campos diferentes. Após este procedimento, compararemos os resultados obtidos com o modelo teórico proposto por Zanon e colaboradores [11].

Nas figuras 4.7 e 4.8 podemos observar a evolução temporal da população do estado $32S_{1/2}$, para as mesmas situações de campo mostradas na figura 4.4 e 4.5; após a realização do procedimento discutido acima. A curva vermelha (azul) representa o comportamento previsto pelo modelo (Capítulo 2, seção 2.6) para diferentes valores de campo elétrico para q = 0,2 (0,01). Os valores de tempo de vida para os estados $32P_{3/2}$ e $32S_{1/2}$ constam na referência [12].

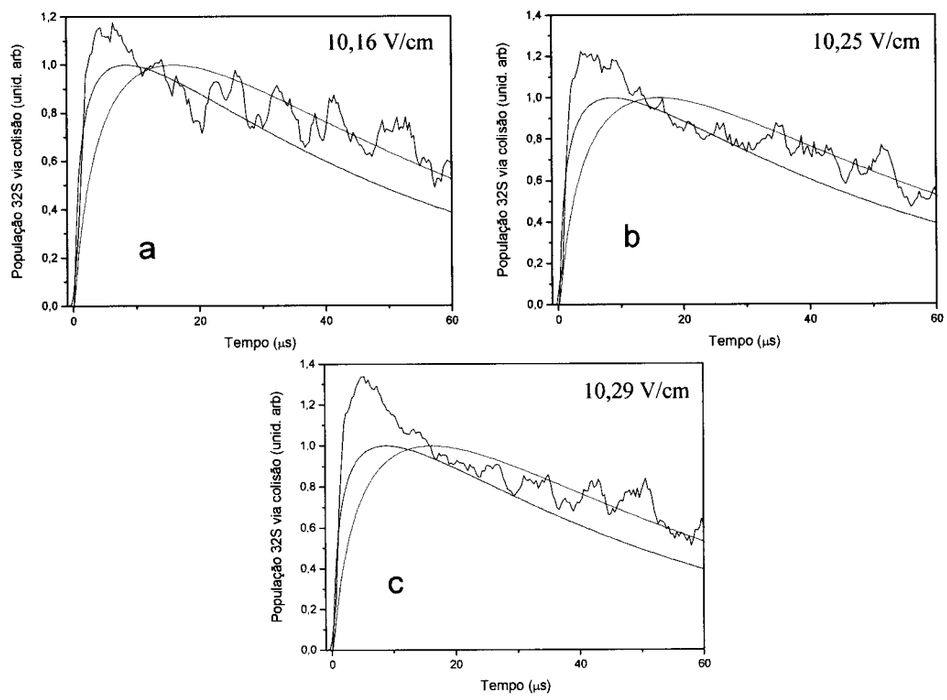

Figura 4.7: Evolução temporal para diferentes valores de campo elétrico para o caso $|m_j|$ = 1/2 + 1/2. Após subtrair as curvas em preto representam os dados experimentais para os respectivos campos elétricos aplicados. As curvas em vermelho/azul representam o comportamento previsto pelo modelo para q = 0,2 e 0,01: a) 10,16 V/cm, b) 10.25 V/cm e c) 10.29 V/cm.

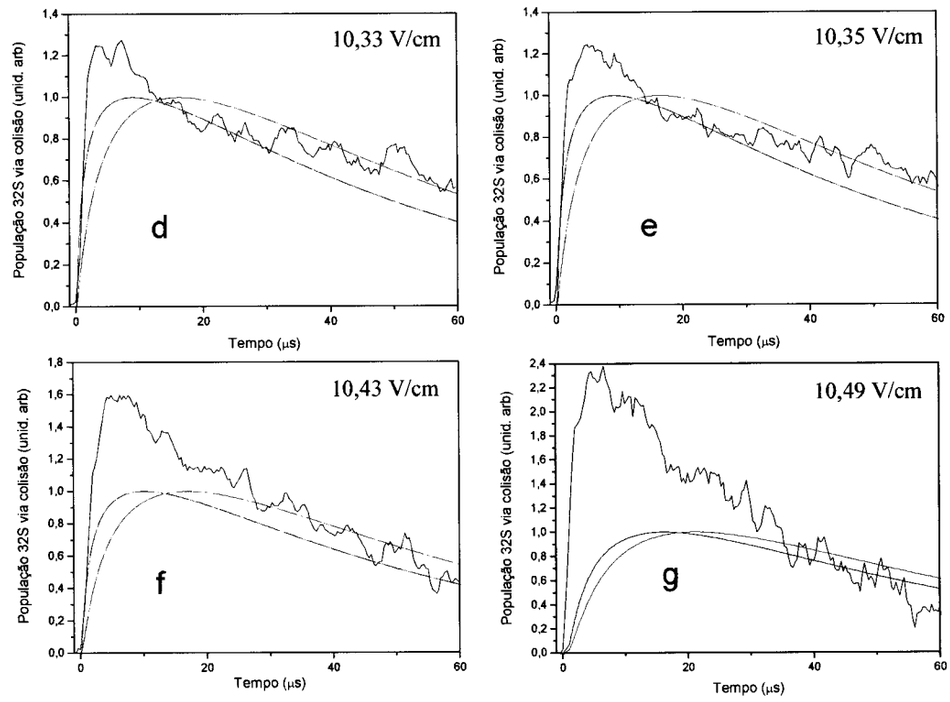

Figura 4.8: Evolução temporal para diferentes valores de campo elétrico para o caso $|m_j|$ = 1/2 + 1/2. Após subtrair as curvas em preto representam os dados experimentais para os respectivos campos elétricos aplicados. As curvas em vermelho/azul representam o comportamento previsto pelo modelo para q = 0,2 e 0,01: d) 10,33 V/cm, e) 10,35 V/cm, f) 10.43 V/cm e g) 10.49 V/cm.

Observando as figuras 4.7 e 4.8 fica claro que conforme nos afastamos da ressonância a concordância entre o modelo teórico proposto e os resultados experimentais, melhora. Contudo, somos incapazes de atribuir a cada curva um único parâmetro q. Qual a razão para isso? Vamos nos concentrar em mais detalhes como o parâmetro q pode ser calculado utilizando-se a teoria de Landau-Zener [13], a qual descreve o comportamento de um sistema quântico na presença de um cruzamento evitado como vimos no Capítulo 2, e pode ser expresso como:

$$q = 2e^{-A}\left(1 - e^{-A}\right); \tag{4.5}$$

com

$$A = \frac{2\pi\Omega^2}{hv\left|\frac{dV}{dR}\right|_{R=R_c}}; \tag{4.6}$$

onde Ω é o elemento de matriz responsável pelo acoplamento entre os potenciais moleculares, v e a velocidade atômica no ponto de cruzamento dos potenciais e dV/dR é a diferença das derivadas dos potencias no ponto de cruzamento. Os potenciais, para as assíntotas nP_J-nP_J de estados com baixo número quântico principal, têm sido obtido por perturbação por Marinescu [14] baseado nos termos de interação assintóticos de Dalgarno [15]. Estes cálculos têm sido estendidos para altos estados de Rydberg [16], ou seja, $V(R) \simeq -C_6/R^6 - C_8/R^8 - C_{10}/R^{10}$ para a assíntota $nS_{1/2}$ –$nS_{1/2}$, e $V(R) \simeq - C_5/R^5 - C_6/R^6 - C_8/R^8$ para as assintotas nP_J –nP_J [15,16]. Para a respectiva colisão estudada neste capitulo os valores para os coeficientes de dispersão são C_5 = -5,2 x 10^{12} u.a. e C_6 = 5,2 x 10^{17} u.a para $32P_{3/2}$ + $32P_{3/2}$, e C_6 = -1,2 x 10^{17} u.a. para $32S_{1/2}$ + $33S_{1/2}$ [17].

Neste trabalho, estamos considerando que o efeito Stark somente altera a diferença de energia dos potenciais assintóticos envolvidos no processo. Também, vamos considerar que o par atômico inicia a colisão com velocidade inicial igual a zero, o que é razoável, e com isso, podemos determinar precisamente o ponto de cruzamento, bem como a velocidade e diferença de derivadas do potencial neste ponto. Mas aí encontra-se uma limitação grave do nosso modelo. Ao considerar que para uma dada separação de energia (campo elétrico) entre os canais de entrada e saída da colisão; estamos considerando que todos os pares atômicos terão o mesmo q no cruzamento; ou em outras palavras a mesma velocidade. Esta consideração está errada, pois a velocidade no cruzamento depende da distância internuclear onde o par

foi excitado bem como da posição onde está o cruzamento. Na figura 4.9(a) mostramos a velocidade (obtida utilizando o modelo proposto no Capítulo 2: Eq. 2.11) em função da separação internuclear de excitação e para diferentes cruzamentos, utilizando os potenciais mencionados anteriormente. Na fig. 4.9(b) mostramos o tempo necessário para ir da separação internuclear de excitação ao cruzamento (Capítulo 2; Eq. 2.17) para os vários campos.

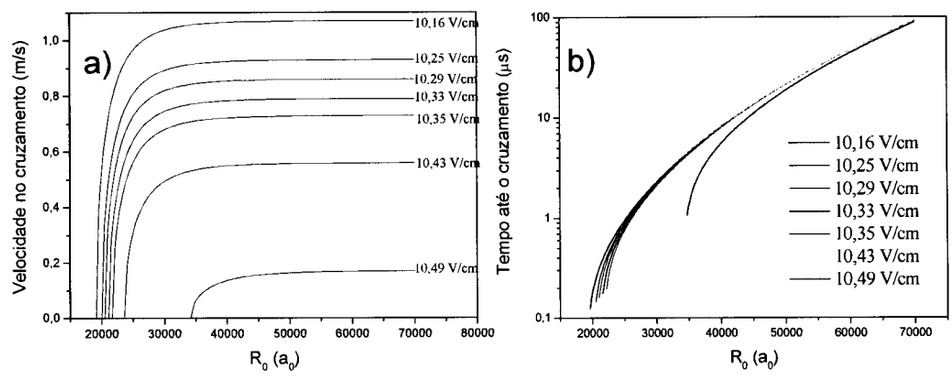

Figura 4.9: a) Velocidade no cruzamento em função da separação internuclear de excitação e para diferentes campos. b) Tempo de viagem necessário para ir da separação internuclear de excitação ao cruzamento para os vários campos.

Da figura 4.9 fica claro que os átomos que contribuirão para a população em $32S_{1/2}$ devido a colisões em curtos tempos; ou seja, que chegarão na região do cruzamento nos primeiros 10 microssegundos; são os mesmos que apresentarão a maior dispersão na velocidade no cruzamento. Assim, fica óbvio que não podemos considerar um modelo onde o parâmetro q é uma constante. Também fica claro porque a concordância com o modelo de q constante melhora conforme nos afastamos da ressonância. Neste caso o número de pares atômicos com uma grande dispersão em velocidade diminui, diminuindo assim seu efeito final na evolução

temporal do $32S_{1/2}$. Um modelo mais real requer que consideremos a dependência de q com a velocidade; ou seja, com a separação internuclear de excitação e a posição do cruzamento. Devemos salientar que os valores de velocidades previstos são compatíveis com os observados em um experimento recente [18]. Além disso, será necessário o cálculo do Ω, já que este é responsável por levantar a degenerescência no ponto de cruzamento, transformando-o em um "*Avoided Crossing*". Para isso é necessário conhecer o acoplamento entre estados e diagonalizar o potencial com esta perturbação. No momento ainda estamos em colaboração com o grupo do Prof. R. Cote da Universidade de Connecticut para realizar esta diagonalização da forma adequada. Visto que o conhecimento detalhado destes potenciais pode levar a uma melhor simulação; e este grupo teórico é especialista nisso.

Referencias

[1] T. F. Galagher, Rydberg Atoms, Rep. Prog. Phys. **51**, 143 (1998).

[2] T. F. Galagher, Rydberg Atoms, Cambridge Univerty Press (1994).

[3] M. J. Renn, W. R. Anderson, and T. F. Galagher, Phys. Rev. A, **49**, 909 (1994).

[4] I. Mourachko, D. Comparat, F. De Toomasi, A. Fioreti, P. Nosbaum, V. M. Akulin and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **80**, 253 (1998).

[5] W. R. Anderson, J. R. Veale and T. F. Galagher, Phys. Rev. Lett. **80**, 249 (1998).

[6] D. Jaksch, J. I. Cirac and P. Zoller, Phys. Rev. Lett. **85**, 2208 (2000).

[7] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, and R. Cote, Phys. Rev. Lett. **87,** 0.37901 (2001).

[8] M. L. Zimmerman, M. G. Littman, M. M. Kash and D. Kleppner. Phys. Rev. A. **20**, 2251 (1979).

[9] J. R. Lowell, *Dipole-Dipole Interactions in a Frozen Gas*, PhD. Thesis, University of Virginia (1998).

[10] W. P. Spencer, A. G. Vaidyanathan and D. Kleppner, Phys. Rev. A, 380 (1982).

[11] R. A. D. Zanon, Est*udos de colisões Frias Envolvendo Mudança de Estado Eletrônico em* ^{85}*Rb*, Tese de Doutorado. IQSC (2000).

[12] A. L. de Oliveira, M. W. Mancini,V. S. Bagnato and L. G. Marcassa, Phys. Rev. Lett. **65**, 0313001 (2002).

[13] C. Zener, Proc. R. Soc. London, Rer. A **137**, 696 (1932); J. R. Rubbmark, M. M. Kash, M. G. Littman, and D. Kleppner, Phys. Rev. A, 3107 (1981)

[14] M. Marinescu Phys. Rev. A. **56**, 4764 (1997); M. Marinescu, H. R. Sadeghpour, and A. Dalgarno, Phys. Rev. A. **49**, 982 (1994); A. Fiuoretti, D. Comparat, C. Drag, T. F. Galagher, P. Pillet Phys. Rev.Lett. **82**, 1839 (1999)

[15] A. Dalgarno and W. D. Davison, Adv. Mol. Phys. **2**, 1 (1966).

[16] C. Boisseau, I. Simbotin and R. Côté, Phys. Rev. Lett. **88**, 133004 (2002).

[17] K. Singer, J. Stanojevic, M. Weidmuller and R. Coté. J. Phys. B. **38**, 295 (2005).

[18] B. Knuffman and G. Raithel, Phys. Rev. A **73**, 020704 R (2006).

Capítulo 5

Colisões com Átomos de Rydberg Frios nos Estados $nS_{1/2}$ e nD_J

Neste capítulo nós descreveremos as observações experimentais para as colisões com transferência de energia na ausência de campo elétrico, ao contrário das colisões estudadas no capítulo anterior, que ocorriam na presença de um campo elétrico. Veremos neste capítulo mais uma vez que colisões em uma armadilha ocorrem de forma binária, embora a radiação de corpo negro desempenhe um papel importante conforme o tempo de interação aumenta.

5.1 Introdução.

Na literatura ainda há muita discussão a respeito da contribuição de muitos corpos ou de dois corpos nas colisões que ocorrem entre átomos de Rydberg frios. No trabalho inicial de Anderson e colaboradores [1], os autores interpretaram seus resultados de colisões como puramente devido a muitos corpos; os quais depois

concordam em parte com os resultados apresentados por Mourachko e colaboradores [2]. Nesse trabalho [2], os autores alegam que colisões em AMO podem ser controladas, ou seja, podemos manipular a contribuição de dois e muitos corpos introduzindo outros estados de Rydberg no processo. Apesar desta discussão não há na literatura experimentos confiáveis que testem a dependência do sinal de colisões em função da densidade atômica do estado inicial. Mesmo nossos resultados iniciais [3] são muito limitados nesta área. Assim, decidimos esclarecer definitivamente esta questão, visto que nosso sistema atual é muito mais estável e confiável do que o utilizado anos atrás.

Para isso estudamos as colisões na ausência de campo elétrico; Rb$(n)S_{1/2}$ + $Rb(n)S_{1/2} \rightarrow Rb(n)P_{3/2} + Rb(n-1)P_{3/2}$; e $Rb(n)D_J + Rb(n)D_J \rightarrow (n-2)k + Rb(n+2)Pj$. Nestas colisões monitoramos apenas as populações $Rb(n)P_{3/2}$ e $Rb(n+2)P_J$ proveniente das colisões. Obteremos desta forma a probabilidade de ocorrer transição por transferência de energia em função dos números quânticos n ($27 < n < 37$). É importante ressaltar que estas colisões não são ressonantes, pois o canal de entrada é mais energético que o canal de saída, como mostrado na fig. 5.1. Estes processos foram escolhidos para evitar a necessidade de um campo estático, o que poderiam tornar a sua interpretação mais complexa.

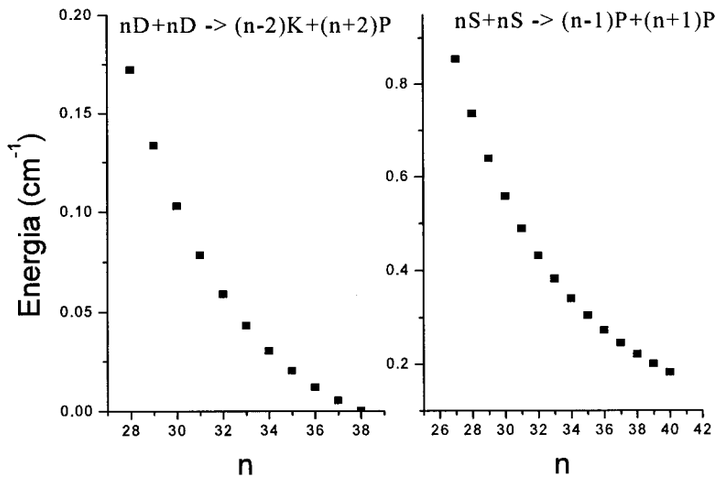

Figura. 5.1: Diferença de energia entre os canais de entrada e saída dos dois processos colisionais estudados.

Assim, após a colisão esta diferença de energia é convertida em energia cinética e os átomos saem com velocidades consideráveis após a colisão. Independente disso, nós mostraremos claramente que as populações resultantes das colisões são devido a colisões de dois corpos.

5.2 Colisões $nS_{1/2} + nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n\text{-}1)P_{3/2}$: Dependência com a densidade atômica.

O intuito deste primeiro experimento é desvendar a importância da contribuição da colisão de dois corpos nos átomos de Rydberg e se há alguma evidência de vários corpos. Utilizaremos o $32S_{1/2}$ para descrever o experimento e depois estenderemos para outros números quânticos. Portanto, teremos o seguinte processo colisional:

$$32S_{1/2} + 32S_{1/2} \rightarrow 32P_{3/2} + 31P_{3/2} \qquad (5.1)$$

Para confirmarmos que a colisão descrita pela eq. 5.1 produz átomos no estado $32P_{3/2}$, comparamos o sinal dos elétrons da colisão $32P_{3/2} + 32P_{3/2} \rightarrow 32S_{1/2} + 33S_{1/2}$ (cap. 4) com o sinal da colisão $32S_{1/2} + 32S_{1/2} \rightarrow 32P_{3/2} + 31P_{3/2}$ para um tempo de interação de 8 microssegundos. Os resultados das respectivas colisões estão explicito na figura 5.2.

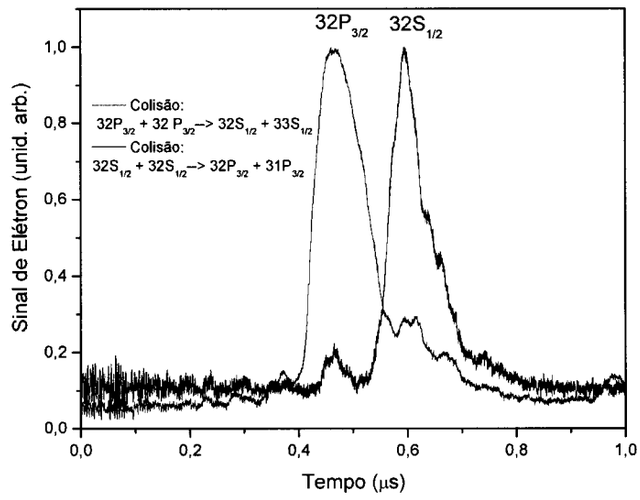

Figura 5.2: Sinal de elétrons resolvido no tempo obtido após um tempo de interação de 8μs. A curva vermelha representa o sinal de colisão $32P_{3/2} + 32P_{3/2} \rightarrow 32S_{1/2}$. A curva em azul representa o sinal das colisões $32S_{1/2} + 32S_{1/2} \rightarrow 32P_{3/2}$. Os estados $32S_{1/2}$ e $32P_{3/2}$ estão mostrados no gráfico.

Para se determinar a importância da colisão de dois corpos nos átomos de Rydberg, a princípio só precisamos medir a população do canal de saída em função da densidade do canal de entrada. Mas para termos uma visão completa do processo, decidimos realizar este experimento em função do tempo de interação também. Na figura 5.3 mostramos o comportamento das populações atômicas em função do tempo de interação variável.

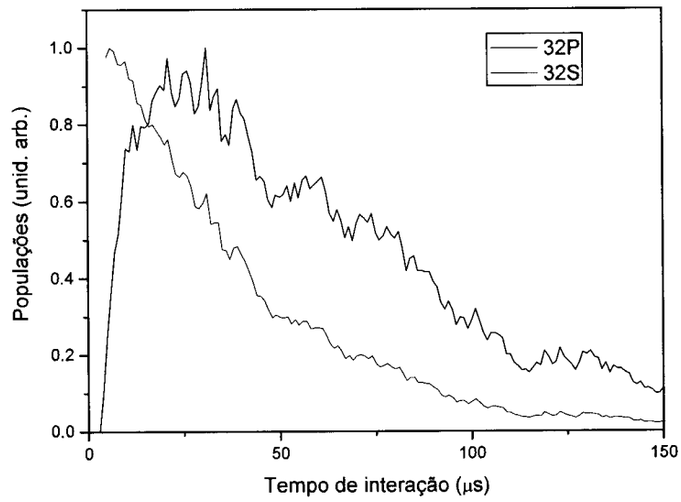

Figura 5.3: Evolução temporal da população $32S_{1/2}$ (curva vermelha) antes da colisão e $32P_{3/2}$ (curva preta) após colisão. A população em $32P_{3/2}$ é produzida pelo canal de colisão $32S_{1/2}$ + $32S_{1/2}$ → $32P_{3/2}$ em função do tempo de interação. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.

Utilizando a fig.5.3 estudamos a população $32P_{3/2}$ proveniente desta colisão variando o tempo de interação de 4 μs, 8 μs, 11 μs, 21 μs, 30 μs e 51 μs. Para cada tempo de interação fixo, variamos a densidade de átomos no estado $32S_{1/2}$. O gráfico abaixo (figura 5.4) mostra a população do estado $32P_{3/2}$ em função da densidade atômica no estado $32S_{1/2}$ para diferentes tempos de interação.

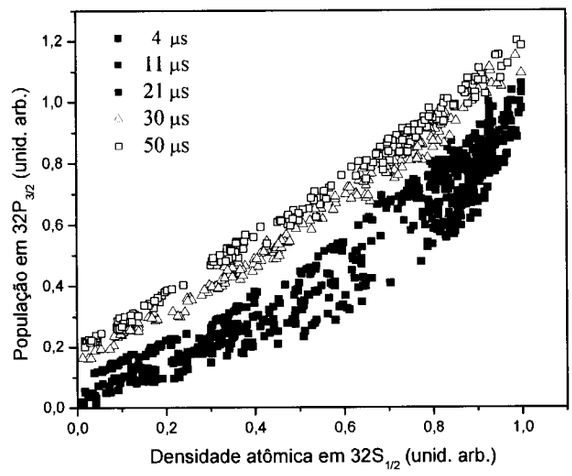

Figura 5.4: Comportamento da população $32P_{3/2}$ em função da densidade em $32S_{1/2}$. As curvas estão deslocadas na vertical para melhor visualização das mesmas. Conforme aumentamos o tempo de interação, a curva deixa de apresentar um comportamento quadrático e passa a apresentar um linear. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.

Fica claro da fig. 5.4 que para curtos tempos o comportamento é quadrático e que para longos tempos de interação ele se torna linear. Para entendermos isso de uma forma melhor, ajustamos as curvas acima com a seguinte expressão:

$$P_{32P} = A n_{32S}^{B} \; ; \tag{5.2}$$

onde A e B são os parâmetros de ajuste e n_{32S} é a densidade atômica no estado $32S_{1/2}$. Na figura 5.5 mostramos o comportamento do parâmetro B em função do tempo de interação.

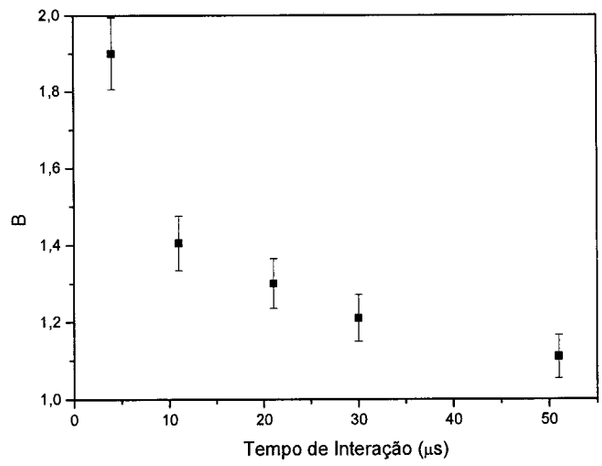

Figura 5.5: Comportamento do parâmetro *B* em função do tempo de interação. Vemos que conforme aumentamos o tempo de interação o parâmetro *B* diminui, indo de um comportamento quadrático para linear.

Este comportamento das curvas para grandes tempos de interação é intrigante, ou seja, qual é o mecanismo físico responsável por tal comportamento nas curvas? Bem, a explicação é muito simples, os átomos de Rydberg apresentam os estados muito próximos e assim podem ocorrem transições entre diferentes estados devido à radiação de corpo negro. O efeito na população devido às colisões é proporcional a densidade ao quadrado, enquanto que o efeito da radiação do corpo negro é linear com a densidade. Assim, no início como a densidade no estado $32S_{1/2}$ é alta, o sinal em $32P_{3/2}$ é devido exclusivamente a colisões de 2 corpos, apresentando uma dependência quadrática. Conforme a densidade em $32S_{1/2}$ diminui, a contribuição das colisões vai diminuindo e a de corpo negro aumenta. No limite de tempo muito grande, a radiação de corpo negro domina completamente e a população em $32P_{3/2}$ passa a ser linear com a densidade em $32S_{1/2}$. Desta forma, esta explicação qualitativa descreve exatamente o que é apresentado na fig. 5.5. De qualquer forma, é

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

evidente que no início as colisões de 2 corpos são as responsáveis pela a população em $32P_{3/2}$.

Na tentativa de explicar o comportamento do parâmetro B em função do tempo de interação consideramos um modelo simplificado de equações de taxa para 3 níveis ($32P_{3/2}$, $31P_{3/2}$ e $32S_{1/2}$) [4]. Neste modelo consideramos o decaimento radiativo, a redistribuição devido à radiação de corpo negro e as colisões:

j

$$\begin{aligned}
\frac{dN_{32S}}{dt} &= -\frac{N_{32S}}{\tau_{32S}} - \gamma_{32S32P}N_{32S} - \gamma_{32S31P}N_{32S} - \gamma_{C}N^{2}{}_{32S} + \gamma_{32P32S}N_{32P} + \gamma_{31P32S}N_{31P} \\
\frac{dN_{32P}}{dt} &= -\frac{N_{32P}}{\tau_{32P}} - \gamma_{32P32S}N_{32P} + \frac{\gamma_{C}}{2}N^{2}{}_{32S} + \gamma_{32S32P}N_{32S} \\
\frac{dN_{31P}}{dt} &= -\frac{N_{31P}}{\tau_{31P}} - \gamma_{31P32S}N_{31P} + \frac{\gamma_{C}}{2}N^{2}{}_{32S} + \gamma_{32S31P}N_{32S}
\end{aligned} \tag{5.3}$$

onde N_{33S}, N_{32P} e N_{32S} são as populações dos respectivos estados; τ_i é o tempo de vida radiativo do estado i enquanto γ_{ij} (com $\gamma_{ij} \neq \gamma_{ji}$) envolve os acoplamentos entre os diferentes estados considerando absorção e emissão (espontânea e estimulada) da radiação de corpo negro. γ_c é a taxa de colisão de dois corpos. Em seguida, obtivemos a evolução temporal do sistema acima para diferentes populações no estado $32S_{1/2}$. Assim, para um tempo fixo, pudemos obter a população no estado $32P_{3/2}$ em função da população em $32S_{1/2}$, e assim determinar um parâmetro B teórico. Na fig. 5.6 mostramos a evolução deste fator B teórico em função do tempo de interação. Os valores dos parâmetros que serão considerados na eq. 5.3 constam na tabela 5.1 e 5,2.

Estados	Energia (u.a.)	Tempo de vida (μs)
$31P_{3/2}$	- 0,0006218	52,4
$32S_{1/2}$	- 0,0006000	37,4
$32P_{3/2}$	- 0,0005801	61,6

Tabela 5.1: Contendo valores dos níveis de energia e tempo de vida dos respectivos estados: $32S_{1/2}$, $32P_{3/2}$ e $31P_{3/2}$..

O acoplamento γ_{ij} entre diferentes estados considerando a absorção e emissão (espontânea e estimulada) é representado por:

$$\gamma_{ij} = A_{ij}(\bar{n} + \theta_{ij}) \tag{5.4}$$

onde $\bar{n}$ é o número de ocupação por modo do campo de radiação para uma temperatura T e freqüência de transição v, dado por: $\bar{n} = 1/e^{hv/Kt} - 1$, e ;

$$\theta_{ij} = \begin{cases} 1 \rightarrow E_i > E_j \\ 0 \rightarrow E_i < E_j \end{cases}$$

Os coeficientes A_{ij} também conhecidos como Coeficientes A de Einstein, podem ser calculados com a mecânica quântica calculando-se o acoplamento entre o campo da luz e o átomo. Ele é dado por:

$$A_{n'l',nl} = \frac{4e^2\omega^3}{3\hbar c^3}\frac{l_{\max}}{2l+1}\left|\langle n'l'|r|nl\rangle\right|^2 \tag{5.5}$$

onde: $\omega_{nl,n'l'} = (W_{n'l'} - W_{nl})/\hbar$. O estado $|nl\rangle$ possui energia maior e l_{max} é o maior valor entre l e l'. A inserção de outros estados, estendendo o modelo para vários níveis, é direta.

Na tabela 5.2 nós temos os valores de acoplamentos calculados para os respectivos estados em questão. O valor do coeficiente A_{32P32S} de Einstein para a transição considerada é dada por: $A_{32P\text{-}32S} = 156s^{-1}$.

$\gamma_{32S \rightarrow 32P}$	2463 s
$\gamma_{32S \rightarrow 31P}$	2524 s
$\gamma_{32P \rightarrow 32S}$	7545 s
$\gamma_{31P \rightarrow 32S}$	7403 s

Tabela 5.2: Valores dos acoplamentos entre os diferentes estados: $32S_{1/2}$, $32P_{3/2}$ e $31P_{3/2}$.

Para resolvermos as equações acopladas 5.3, devemos fazer algumas considerações iniciais, tais como $N_{31P}(0) = 0$; $N_{32S}(0) = 1$; (ou uma fração menor, caso se queira "mudar" a densidade), $N_{32P}(0) = 0$. E utilizando o Método de Euller (primeira derivada) nós resolvemos cada uma das respectivas equações.

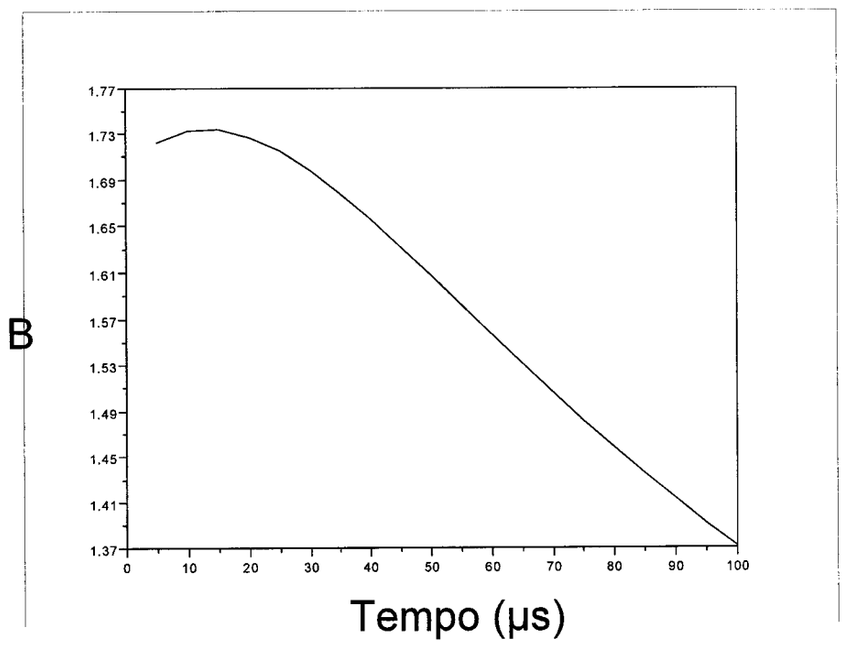

Figura 5.6: Comportamento do parâmetro teórico B em função do tempo de interação. Vemos que conforme aumentamos o tempo de interação o parâmetro B diminui, indo de um comportamento quadrático para linear. Neste caso $\gamma_c = 1000\ A_{32P\text{-}32S}$.

Fica claro que o modelo mostrado na figura 5.6 é capaz de explicar qualitativamente o comportamento de *B* em função do tempo de interação. Apesar de várias tentativas fomos incapazes de reproduzir a curva experimental da figura 5.5.

No entanto, constatamos que para tempos de interação curto, a população é dominada por colisões binárias. Para comprovar isso para outros estados, fixamos o tempo de interação em 4 μs e variamos a densidade atômica para os valores de n = 29 até 37 para este processo colisional estudado. Na figura 5.7 obtemos o comportamento das populações provenientes das colisões consideradas pela eq. 5.1. As populações $nP_{3/2}$ possuem uma dependência quadrática com relação a densidade atômica em $nS_{1/2}$, fortalecendo nossas imposições e resultados experimentais.

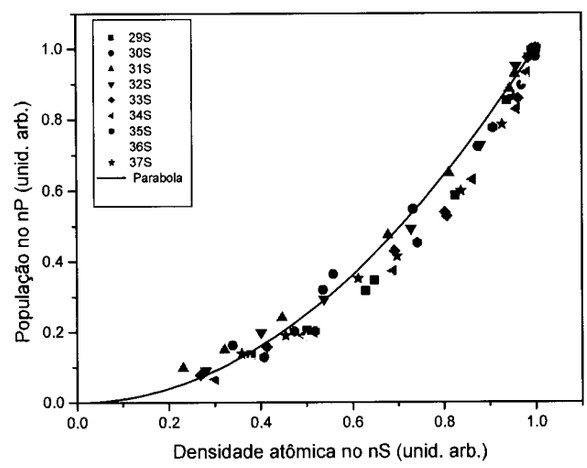

Figura 5.7: Gráfico do comportamento da população $nP_{3/2}$ em função da densidade atômica em $nS_{1/2}$, para um tempo de interação fixo de 4 μs. Vemos que as populações $nP_{3/2}$ apresenta um comportamento quadrático indicando que trata-se de um processo de dois corpos. Os resultados foram normalizados para permitir uma comparação mais clara.

5.3 Colisões $nS_{1/2}+nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n-1)P_{3/2}$ Dependência temporal

Nesta seção apresentaremos um estudo da evolução temporal da colisão de dois corpos que ocorre para o estado $nP_{3/2}$ em função do tempo de interação. Estudaremos a evolução das populações $nP_{3/2}$, com n =29 até 40. Nosso objetivo inicial era comparar a evolução temporal das populações com nosso modelo de dois corpos e obtermos a probabilidade q de haver transição para os estados envolvidos na colisão. Contudo, como foi mostrado no capítulo 4 e neste, existe a influência da radiação de corpo negro na população do estado detectado, neste caso $nP_{3/2}$. Infelizmente, neste caso não é tão trivial separar a contribuição da radiação de corpo negro como o caso mostrado no capítulo 4. Assim, um procedimento para isolar a contribuição da radiação de corpo negro precisa ser planejado. Abaixo nas figuras 5.8-10 mostramos o comportamento temporal das populações nos estados $nP_{3/2}$ em função do tempo de interação. A menos dos dois primeiros gráficos vemos uma tendência do máximo se aproximar para tempos mais curtos conforme n aumenta.

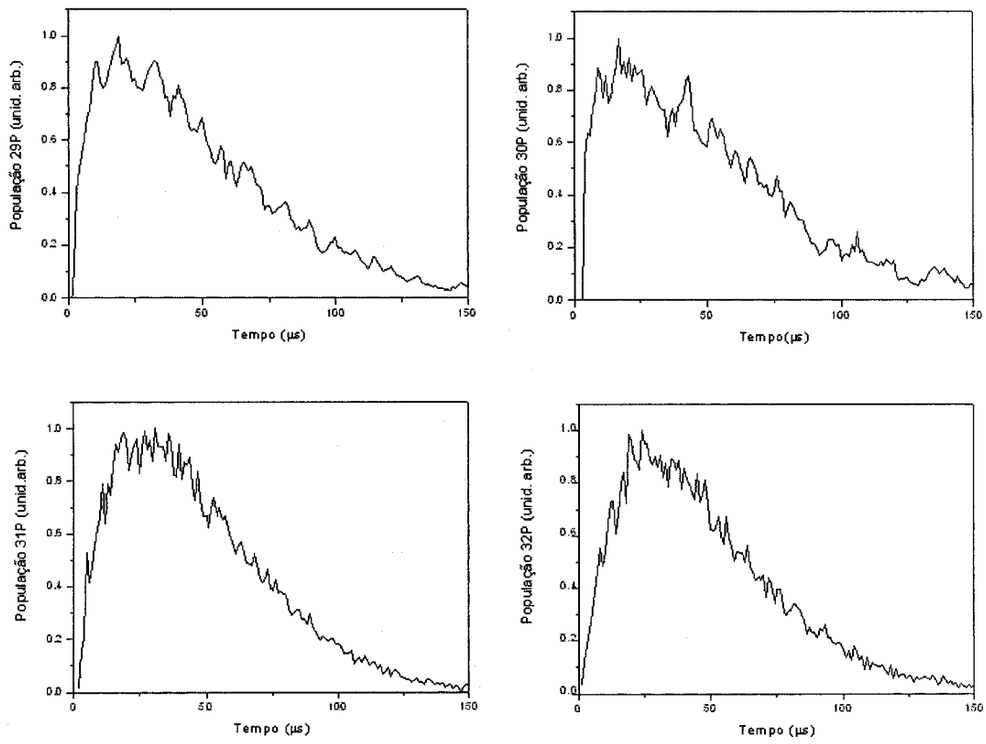

Figura 5.8: Gráficos da evolução temporal da população $nP_{3/2}$ proveniente da colisão: $nS_{1/2} + nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n\text{-}1)P_{3/2}$ para n = 29 até 32, em função do tempo de interação.

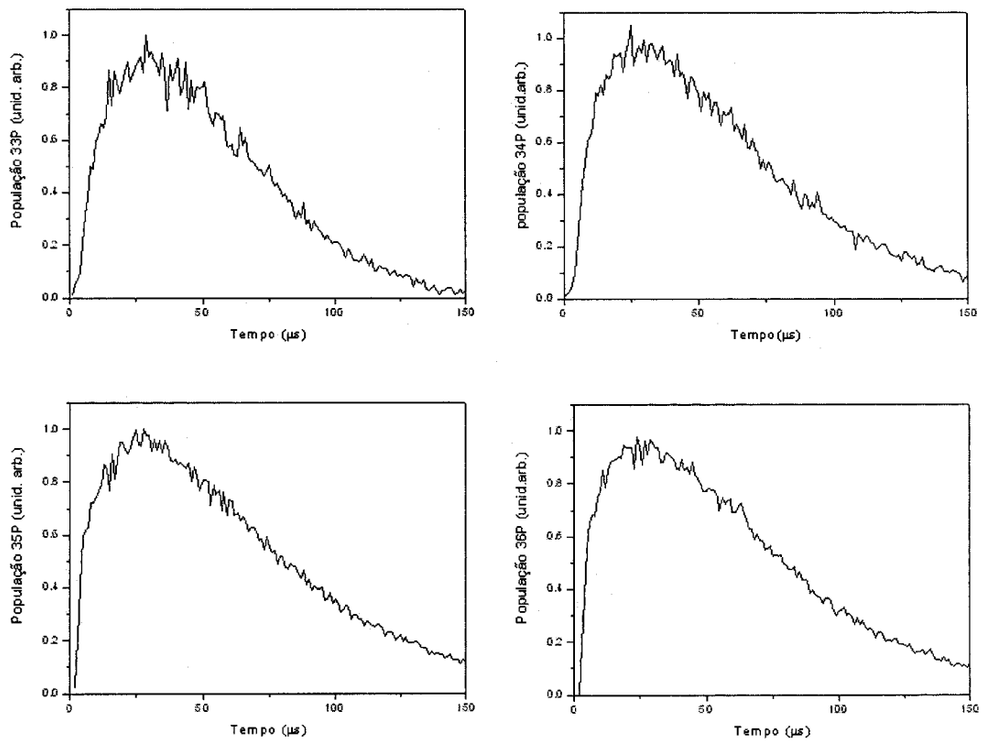

Figura 5.9: Gráficos da evolução temporal da população $nP_{3/2}$ proveniente da colisão: $nS_{1/2} + nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n\text{-}1)P_{3/2}$ para n = 33 até 36, em função do tempo de interação.

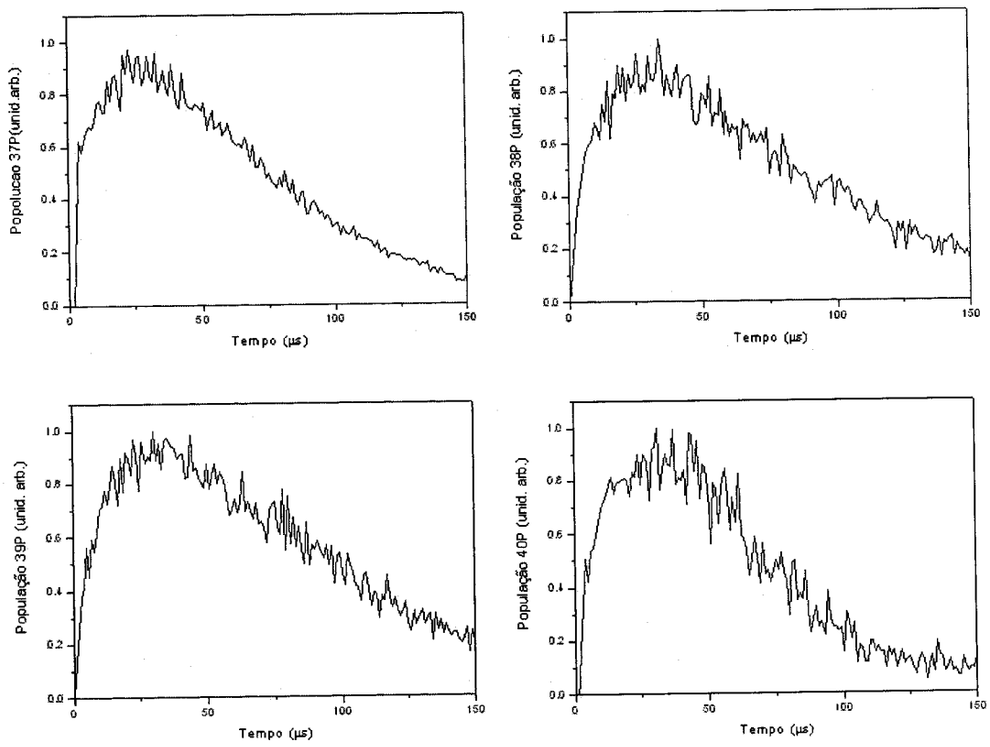

Figura 5.10: Gráficos da evolução temporal da população $nP_{3/2}$ proveniente da colisão: $nS_{1/2} + nS_{1/2} \rightarrow nP_{3/2} + (n\text{-}1)P_{3/2}$ para $n = 37$ até 40, em função do tempo de interação.

Uma forma para tentarmos isolar a contribuição do corpo negro seria medir a evolução temporal em função da densidade até obter um regime de densidade tão baixa, onde colisão não mais será importante. Neste limite teríamos apenas o corpo negro e ai sim poderíamos separar a contribuição do corpo negro da contribuição de colisões. Na figura 5.11 mostramos a evolução temporal do modelo de equações de taxa para a população em $32P_{3/2}$. Na fig. 5.11.a mostramos a população devido apenas a corpo negro, na 5.11.b a população é devido apenas a colisões e na 5.11.c temos as duas contribuições. Fica claro, qualitativamente, que o pico é trazido para tempos menores com a contribuição da colisão. E isso concorda com as observações experimentais do capítulo 4 e deste.

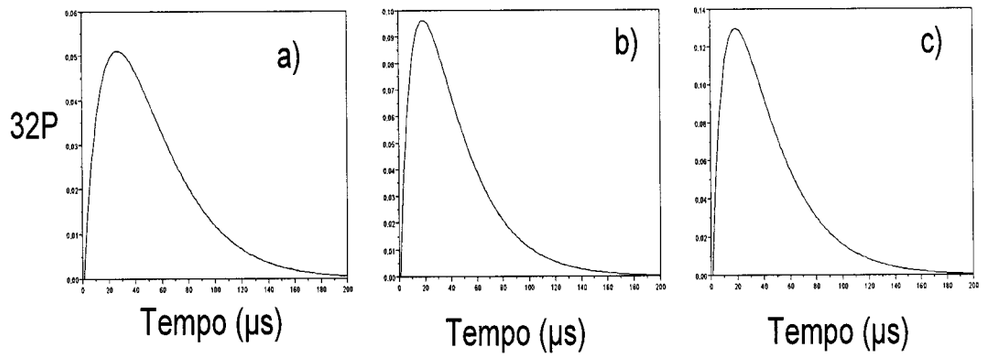

Figura 5.11- Evolução temporal do modelo de equações de taxa para a população em $32P_{3/2}$ a) contribuição devido apenas a radiação de corpo negro, b) contribuição devido apenas a colisões; c) devido as duas contribuições.

5.4 Colisões $nD_J + nD_J \rightarrow (n+2)P_J + (n-2)K$: Dependência com a densidade atômica.

Em adição aos experimentos realizados anteriormente estudaremos nesta secção a colisão

$$nD + nD \rightarrow (n-2)k + (n+2)P\,, \tag{5.3}$$

onde *(n-2)K* refere-se aos estados hidrogenóides (onde $l > 3$; e o defeito quântico é zero). Nós iniciaremos considerando a colisão na ausência de campo elétrico para o número quântico $n = 30$. Neste caso podemos reescrever a eq. 5.3 como.

$$30D + 30D \rightarrow 28K + 32P\,. \tag{5.4}$$

Neste tipo de colisão monitoraremos apenas as populações antes da colisão $30D_J$ e após colisão $32P_J$. Neste experimento gostaríamos de chamar a atenção do leitor ao seguinte fato: devemos lembrar que o nosso campo ionizante é suficiente para ionizar os estados $32P_J$ e $30D_J$, mas nós não temos resolução para diferenciar os subníveis j ou m_j destes estados. Para confirmarmos que estamos realmente observando este tipo

de colisão, adicionamos um pequeno campo estático (5 V/cm) para podermos excitar os estados $31P_J$ e $32P_J$ que são as curvas verde e prata do sinal de elétrons respectivamente na fig. 5.12. Com isso determinamos as posições destes estados. Em seguida excitamos o estado $30D_J$, mantendo o mesmo campo estático (curva vermelha). O pico maior nesta curva é o estado $30D_J$; e o menor antes deste é inequivocamente o $32P_J$. Também devemos ressaltar que a ionização do $31P_J$ ocorre em um campo muito próximo do $30D_J$ como mostrado no capítulo 2.

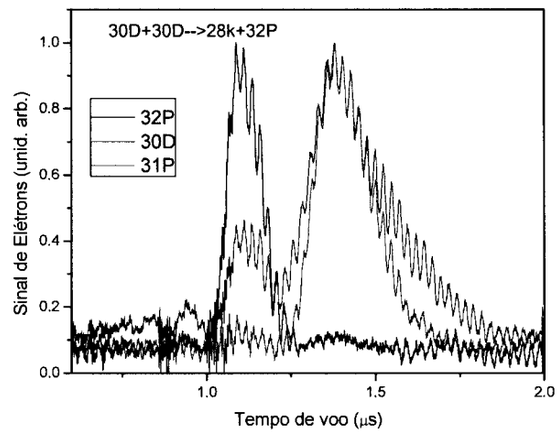

Figura 5.12: Gráfico de sinal de elétrons resolvido no tempo para a colisão $30D_J$ + $30D_J \rightarrow 28K + 32P_J$. A curva em preto é obtida quando excitamos o estado $32P_J$; a em verde corresponde a excitação do estado $31P_J$. Em vermelho temos o sinal após a excitação do estado $30D_J$. O pico maior é o estado $30D_J$ e o menor é estado $32P_J$.

Análogo à seção 5.2 anterior, nós podemos estudar a evolução da população para a colisão escrita pela eq. 5.4, variando o tempo entre excitação e detecção. Na figura 5.13 nós temos as populações dos estados $30D_J$ e $32P_J$ obtidas a partir da variação do tempo de interação.

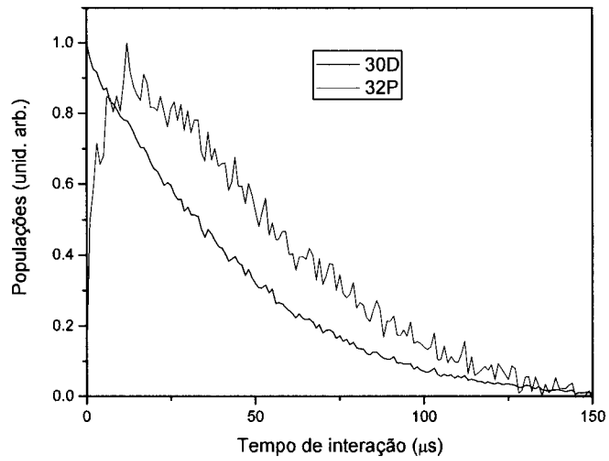

Figura 5.13: Gráfico da evolução da população nos estados $30D_J$ (preto) e $32P_J$ (vermelho) após colisão. As populações são produzidas pelo canal de colisão $30D_J + 30D_J \rightarrow 28K + 32P_J$ em função do tempo de interação. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.

A figura 5.13 apresenta o mesmo comportamento que a figura 5.3, sendo, portanto válidas as mesmas considerações. Assim, estudaremos a população $32P_J$ proveniente da colisão (eq. 5.4) em função da densidade atômica em $30D_J$ variando o tempo de interação (4 μs, 8 μs, 11 μs, 21 μs, 30 μs e 51 μs). A figura 5.14 mostra a população no estado $32P_J$ em função da densidade atômica no estado $30D_J$ para diferentes tempos de interação.

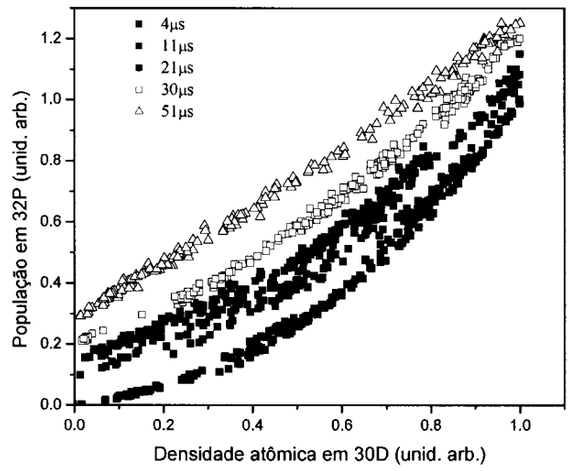

Figura 5.14: Comportamento da população $32P_{3/2}$ em função da densidade em $30D_J$. As curvas estão deslocadas na vertical para melhor visualização das mesmas. Conforme aumentamos o tempo de interação, a curva deixa de apresentar um comportamento quadrático e passa a apresentar um linear. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.

O comportamento da figura 5.14 é semelhante ao da figura 5.4, ou seja, à medida que o tempo de interação aumenta ocorre uma diminuição da inclinação da curva se aproximando de 1. Tratamos os dados da fig. 5.14 como os da fig. 5.4 e obtivemos o parâmetro B em função do tempo de interação. Na figura 5.15 temos o parâmetro B em função do tempo de interação.

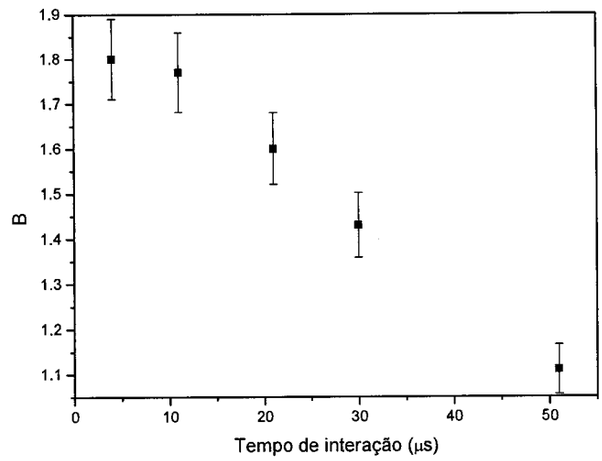

Figura 5.15: Comportamento do parâmetro *B* em função do tempo de interação. Vemos que conforme aumentamos o tempo de interação o parâmetro *B* diminui, indo de um comportamento quadrático para linear.

Novamente o mecanismo responsável por este comportamento tem que ser o de corpo negro. Ou seja, para tempos curtos a densidade no estado $30D_J$ é alta, o sinal em $32P_J$ é devido exclusivamente a colisões de 2 corpos, apresentando uma dependência quadrática. Conforme a densidade em $30D_J$ diminui, a contribuição das colisões vai diminuindo e a de corpo negro aumenta. No limite de tempo muito grande, a radiação de corpo negro domina completamente e a população em $32P_J$ passa a ser linear com a densidade em $30D_J$. Desta forma, esta explicação qualitativa descreve exatamente o que é apresentado na fig. 5.15. De qualquer forma, é evidente que no início as colisões de 2 corpos são as responsáveis pela a população em $32P_J$.

Para comprovar isso para os demais estados, fixamos o tempo de interação em 10 μs e variamos a densidade atômica para os valores de n = 27 até 35 para este processo colisional estudado. Na figura 5.16 obtemos o comportamento das

populações provenientes das colisões consideradas pela eq. 5.3. As populações nP_J possuem uma dependência quadrática com relação a densidade atômica em nD_J.

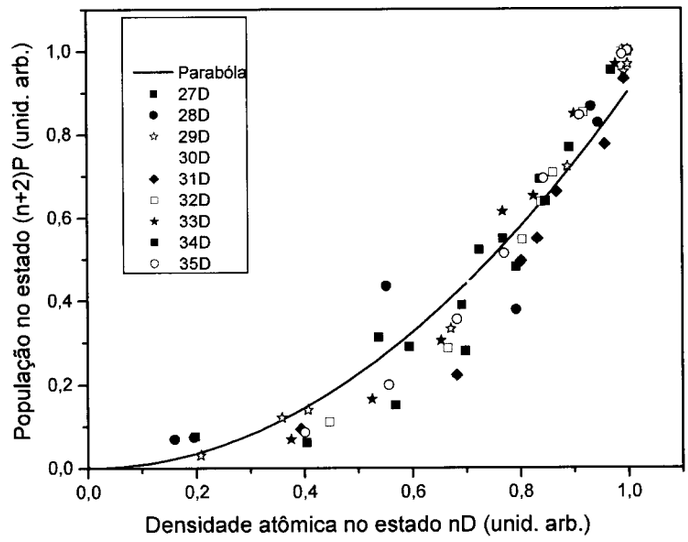

Figura 5.16: Gráfico do comportamento da população $(n+2)P_J$ em função da densidade atômica no estado nD_J, para um tempo de interação de 10 μs. Vemos que $(n+2)P_J$ apresenta um comportamento quadrático indicando que trata-se de um processo de dois corpos. Os resultados foram normalizados para permitir uma análise mais clara.

5.5 Colisões $nD_J + nD_J \rightarrow (n+2)P_J + (n-2)K$: Dependência temporal.

Nesta seção apresentaremos a evolução temporal da colisão envolvendo dois átomos no estado nD_J. Neste caso observamos a evolução das populações $(n+2)P_J$, com n =27 até 35. Nas figuras 5.17 e 18 mostramos o comportamento temporal das populações $(n+2)P_J$ em função do tempo de interação. Todos os gráficos apresentam uma tendência do máximo se aproximar para tempos mais curtos conforme n aumenta. Neste caso a influência da radiação de corpo negro na população do estado detectado, $(n+2)P_J$, também foi mostrada inequivocamente. E um procedimento para isolar a contribuição do corpo negro ainda esta sendo pesquisado neste caso também. Os resultados apresentando aqui parecem concordar qualitativamente com o modelo de equações de taxa.

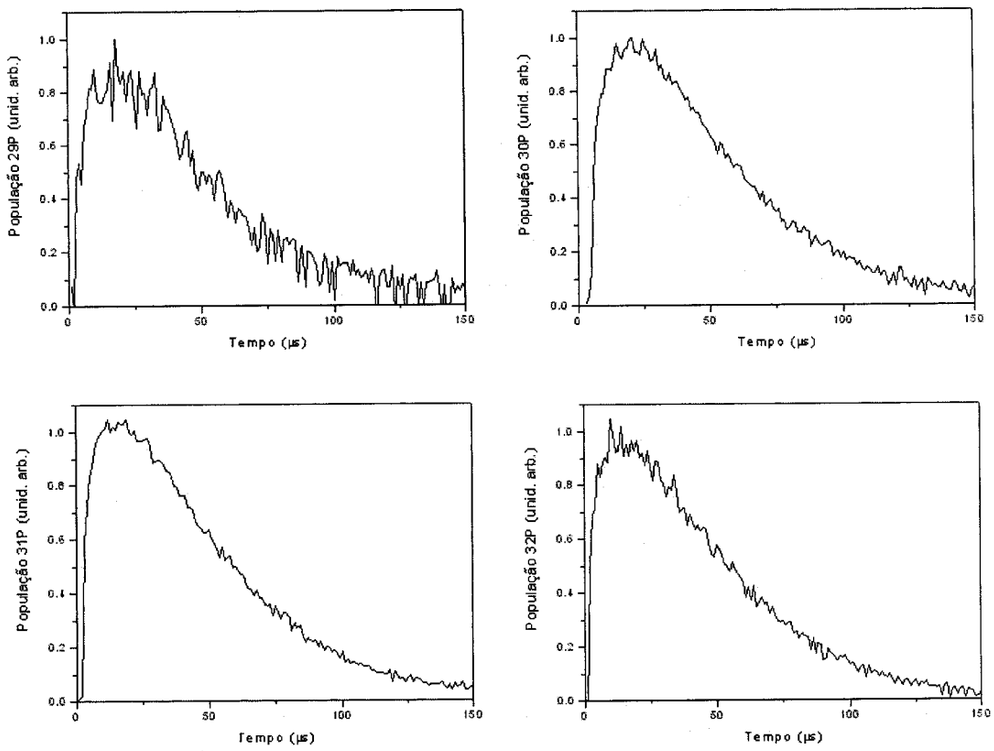

Figura 5.17: Gráficos da evolução temporal da população $nD_J + nD_J \rightarrow (n+2)P_J + (n-2)K$, para $n = 27$ a 30.

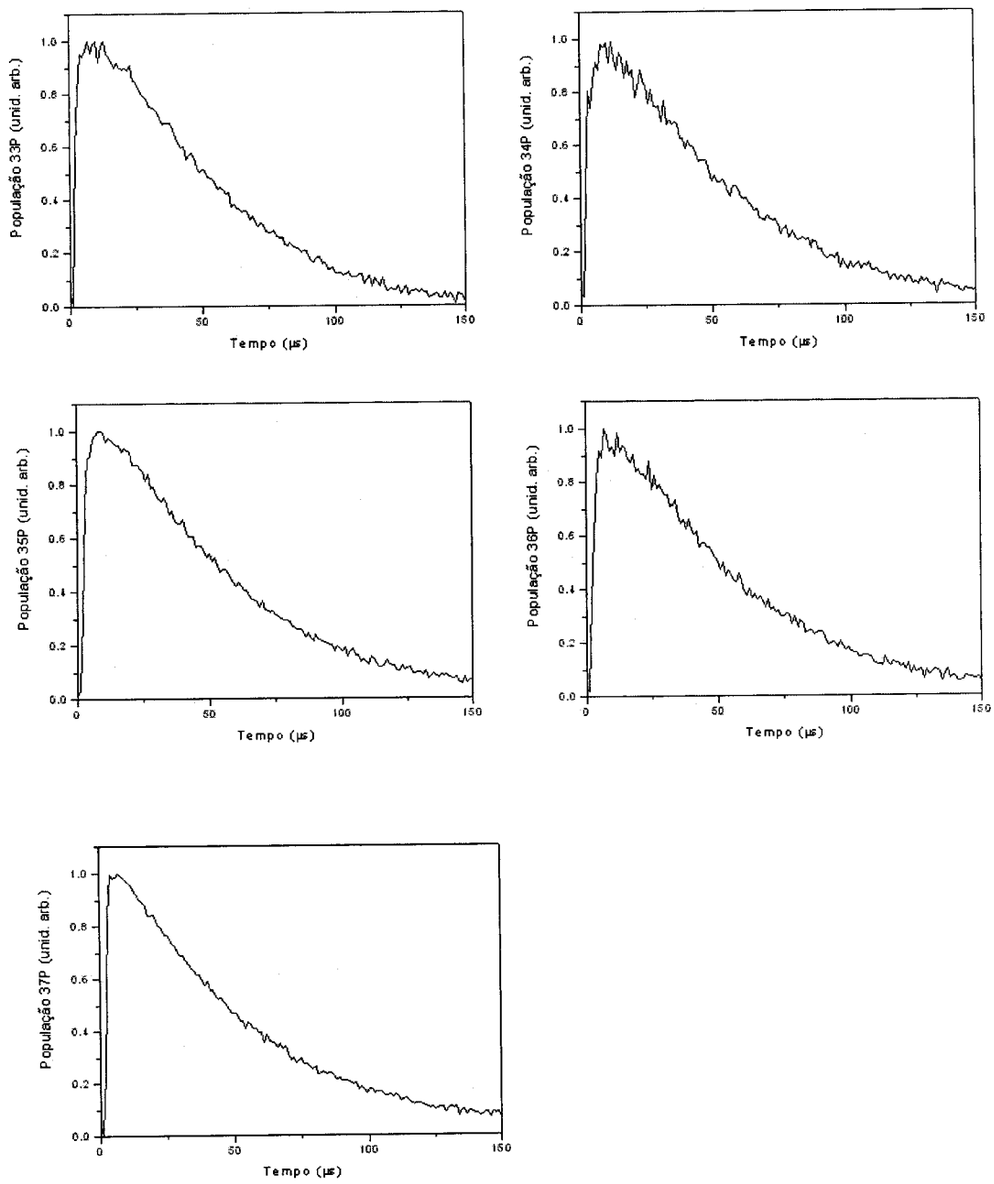

Figura 5.18: Gráficos da evolução temporal da população $nD_J + nD_J \rightarrow (n+2)P_J + (n-2)K$, para $n = 31$ a 35.

IFSC-USP SERVIÇO DE BIBLIOTECA E INFORMAÇÃO

5.6 Aplicação do Modelo de Colisões de Dois Corpos.

Apesar do nosso modelo apresenta algumas limitações ele se mostra eficaz quando aplicado para curtos tempos de interação, onde a influência da radiação de corpo negro é desprezível. Atualmente alguns experimentos realizados nesta escala temporal merecem uma atenção especial, porque sugerem que colisões a baixa temperatura ocorrem via dois corpos e nestas colisões o par movimenta-se sob a ação de um potencial atrativo. Estes experimentos reforçam nossas idéias e abrem uma oportunidade para aplicarmos o nosso modelo e testarmos a sua validade em outras situações. Em um experimento recente Li e colaboradores [5] estudaram o papel da interação dipolo-dipolo na ionização de átomos de Rydberg e a formação de um plasma frio. Li observou a formação de plasma e transferência de população para altos estados excitados inicialmente em $nS_{1/2}$ ou nD_J como função da densidade de átomos de Rydberg e tempo de detecção. Para mostrar que a ionização é devido ao potencial atrativo dipolo-dipolo, foi usado um pulso de microondas para excitar átomos a partir do estado $39S_{1/2}$, esta escolha segundo os autores é devido que este estado não evolui espontaneamente em plasma para tempos menores que 10 μs. Mostramos na figura 5.19 os níveis de energia para as transições $39S_{1/2}39S_{1/2}$ - $39S_{1/2}39P_{3/2}$ em função da separação internuclear R. A freqüência de transição atômica para a transição $39S_{1/2}$ -$39S_{1/2}$ é 68,378 GHz como indicado na figura 5.19. Neste experimento o pulso de microondas é adicionado entre a excitação por laser do estado $39S_{1/2}$ e detecção por ionização. Porém, a duração do pulso de microondas e o tempo de detecção podem ser ajustados. Nesta configuração o par atômico inicia a colisão no estado $39S_{1/2}$-$39S_{1/2}$ onde em uma determinada separação internuclear absorve um fóton de microondas e é excitado para o potencial $39S_{1/2}$-$39P_{3/2}$.

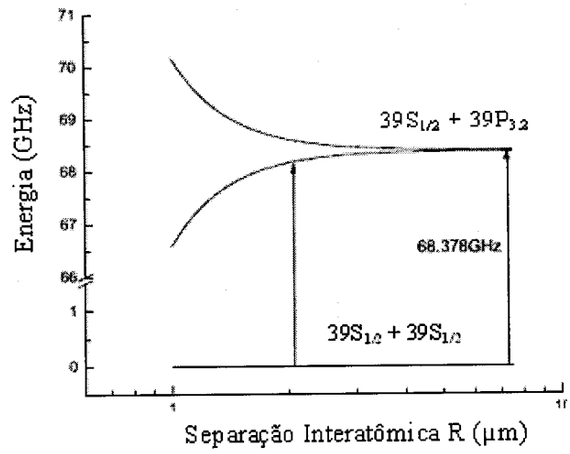

Figura 5.19: Níveis de energias para as transições $39S_{1/2}39S_{1/2}$ -$39S_{1/2}39P_{3/2}$ em função da separação internuclear *R*. A freqüência de transições atômicas entre $39S_{1/2}$ e $39P_{3/2}$ é 68,378 GHz. A degenerescência dos estados $39S_{1/2}39P_{3/2}$ e $39P_{3/2}39S_{1/2}$ são levantadas para qualquer separação finita *R* devido à interação dipolo-dipolo entre os átomos.

Se o fóton é sintonizado para o azul da transição atômica o par será excitado para um potencial repulsivo e os átomos não colidiram. Porém, se o fóton é sintonizado para o vermelho da transição atômica o par será excitado para um potencial atrativo e os átomos serão acelerados um contra o outro, e a curtas distâncias eles serão ionizados, apresentando uma assimetria na forma de linha. Na figura 5.20 nós mostramos o sinal de elétrons resolvido no tempo detectados após 3,5 μs depois do estado $39S_{1/2}$ ser populado com e sem o pulso de microondas para as transições $39S_{1/2}$-$39P_{3/2}$. O pulso de microondas é fixado em 68,346 GHz, ou seja deslocado para o vermelho da ressonância. De fato, como podemos constatar os autores estão conduzindo as transições moleculares dos estados $39S_{1/2}39S_{1/2}$ para o estado $39S_{1/2}39P_{3/2}$ fixado sob uma curva do potencial atrativo como indicado pela seta na figura 5.19.

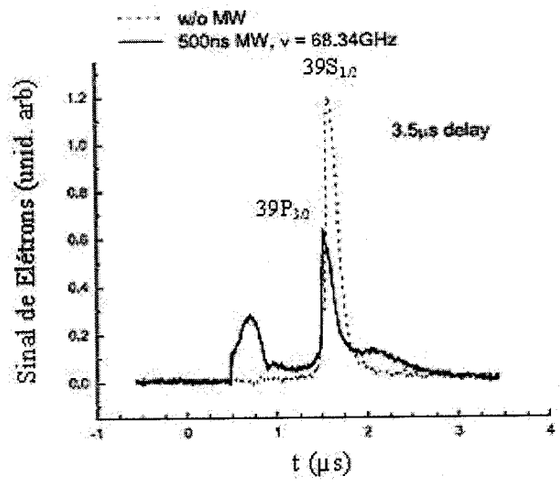

Figura 5.20: Sinal de elétrons depois de 3,5μs após a excitação dos átomos nos estados $39S_{1/2}$ com (linha sólida) e sem (linha pontilhada) o pulso de microondas. Sem o pulso de microondas somente o sinal dos estados $39S_{1/2}$ é observado. Com o pulso de microondas um sinal de plasma e redistribuição da população de Rydberg é evidente.

Na figura 5.20 temos ambos o sinal com e sem microondas para um mesmo número de átomos $39S_{1/2}$ excitados. Sem o pulso a população permanece no estado 39s, porém com ele forma um plasma conforme mostra o sinal para 0,5 μs e existe uma transferência de população para outros estados de Rydberg. Se nós monitorarmos o sinal de plasma na figura 5.20 enquanto variamos a freqüência de microondas, o resultado obtido é um espectro como mostra a figura 5.21. O espectro tem um corte (*cutoff*) para a freqüência de transição atômica 68,378 GHz; o plasma somente é formado quando estamos abaixo desta freqüência ou seja, correspondendo a um lado atrativo da curva de potencial (figura 5.19), porém, não há plasma quando passamos para altas freqüências, correspondendo a um lado da curva de potencial repulsivo.

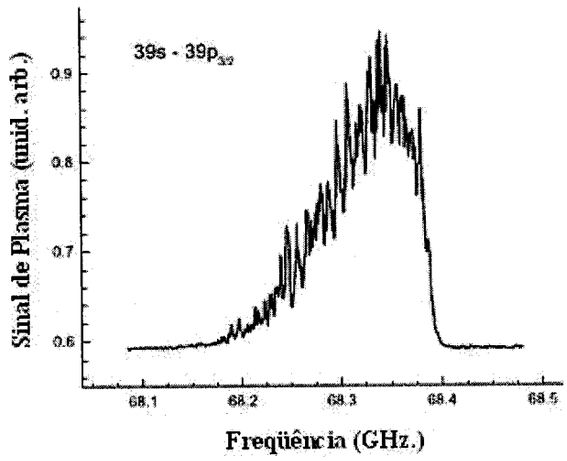

Figura 5.21: Sinal de plasma em função da freqüência de microondas. O pulso de microondas tem duração de 500 ns e o tempo de detecção de 3,5 μs. O sinal de plasma somente é observado para baixas freqüências (63,368 GHz) da ressonância da transição $39S_{1/2}$ -$39P_{3/2}$, correspondendo a um potencial atrativo.

Para estarem seguros que a interação dipolo-dipolo atrativa entre os átomos induzida por transição de microondas é realmente responsável pela formação de íons para plasma, mudaram o tempo de detecção para 1 μs, onde averiguaram que neste intervalo de tempos íons ainda não seriam formados, portanto, não havia plasma. Na figura 5.22 temos o sinal de íons depois de 1 μs de atraso após a excitação do estado $39S_{1/2}$. Neste experimento o pulso tem uma duração de 500 ns e a freqüência é fixada para o vermelho da ressonância $39S_{1/2}$-$39P_{3/2}$. Para este atraso não há formação de plasma, o qual é verificado ao olharmos o sinal de elétrons, porém, existe um sinal de íons livres o qual supostamente vem da interação dipolo-dipolo atrativa induzida pela transição de microondas do estado $39S_{1/2}39P_{3/2}$.

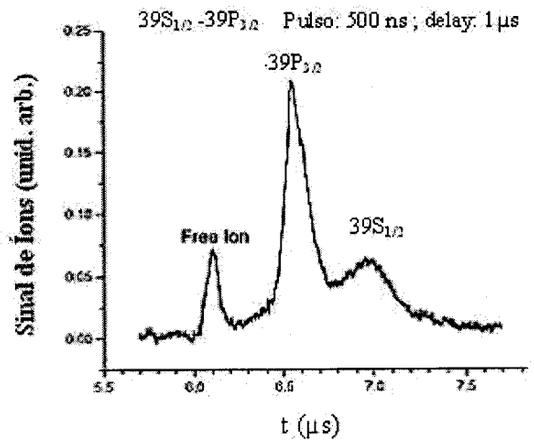

Figura 5.22: Sinal de íons depois de 1 μs de atraso apos a excitação do estado $39S_{1/2}$. A duração do pulso de microondas é de 500 ns, a freqüência é fixada para o vermelho da transição de ressonância $39S_{1/2}$-$39P_{3/2}$. Para este tempo de atraso existe um sinal de íons livre como mostra a figura, porem não há plasma, o qual é verificado ao olharmos para o sinal de elétrons.

Ao monitorarem o sinal de íons livres (figura 5.22) enquanto variaram a freqüência de microondas obtiveram um espectro como mostra a figura 5.23. Novamente o espectro tem um corte (*cutoff*) para a freqüência de transição atômica de 63,378 GHz; íons são formados quando estamos na ressonância $39S_{1/2}39S_{1/2}$ - $39S_{1/2}39P_{3/2}$ de 63,378 GHz, porém, quando diminuímos a freqüência de microondas (deslocamento para o vermelho), que corresponde ao lado do potencial atrativo da curva de potencial explicito na figura 5.19 uma quantidade menor de átomos irá colidir e portanto, produzirá um número menor de íons Porém, para altas freqüências (maior que 63,378 GHz) que corresponde a um potencial repulsivo, não haverá colisão entre os pares, não havendo portanto, a formação de ions. Ao realizarem este experimento os autores concluíram que os potenciais de longo alcance causam nos átomos de Rydberg frios movimentos e este efeito não podem ser negligenciados para futuras aplicações.

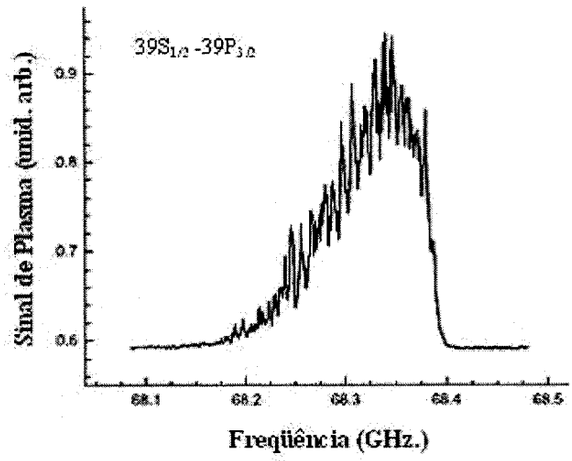

Figura 5.23: Sinal de íons livres em função da freqüência de microondas. Novamente o pulso de microondas é 500ns e o tempo de detecção é 1μs. O sinal de íons livres é observado para baixas freqüências de ressonância da transição $39S_{1/2}$-$39P_{3/2}$.

Nesta seção, nós adaptamos o modelo da referência [6] para o experimento realizado por Li e colaboradores para o domínio da freqüência. O modelo permite produzir a dependência da freqüência do sinal de íons, e a comparação com os resultados experimentais mostram também um bom acordo. Esta comparação sugere que também os átomos de Rydberg movem-se devido à internação de dipolo-dipolo e que varias órbitas devem tomar lugar antes da colisão finalizar.

Nós iniciaremos supondo um par de átomos em uma separação internuclear R_0 na presença de um campo de microondas de freqüência w_m e intensidade I. O número de pares atômicos colidindo N_{at} entre R_0 e $R_0 + dR_0$ na curva de potencial excitado atrativo $39S_{1/2}$-$39S_{1/2}$ é proporcional a:

$$N_{at} \alpha 4\pi R_0^2 dR_0 \varepsilon(R_0, w_m, I) \tag{5.9}$$

sendo que o primeiro termo $4\pi R_0^2 dR_o$ representa o número de pares atômicos colidindo na separação internuclear R_0. O segundo é a taxa de excitação semi-clássica a qual é dada por:

$$\varepsilon(R_0, w_m, I) = \frac{I/I_s}{1 + \frac{4}{\Gamma^2}\left(\Delta + \frac{C_3}{\hbar R_0^3}\right)^2 + \frac{I}{I_s}}; \tag{5.10}$$

onde a constante C_3 caracteriza a parte de longo alcance do potencial molecular atrativo excitado, w_0 é a freqüência atômica de ressonância, Γ é a taxa de decaimento espontâneo, $\Delta = w_m - w_0$ é a desssintonia da freqüência de microondas e I_s é a intensidade de saturação da transição. Se nós considerarmos que o alargamento por saturação é pequeno comparado com a dessintonia, a freqüência de microondas será capaz de excitar somente os pares atômicos que obedecem a condição de ressonância $\Delta = -C_3/\hbar R_0^3$. Levando em consideração esta condição, o número de pares colidindo no estado excitado será dado por,

$$N_{at} \; \alpha \; R_0^2 \left| \frac{d\Delta}{dR_0} \right|^{-1} \alpha \Delta^{-2} \tag{5.11}$$

depois da excitação os átomos serão acelerados um contra o outro. Durante este movimento é necessário levar em conta a probabilidade dos pares colisionais sobrevivem ao decaimento espontâneo e atingir uma curta separação internuclear. Neste ponto, é importante definir a distância máxima para a colisão produzir um íon (R_{ion}). Se os pares atômicos colidindo decair em uma distância internuclear maior que (R_{ion}), os íons não serão produzidos. Se o par atômico colidindo decair em uma distância menor que (R_{ion}) um dos átomos será ionizado. Entretanto, nós podemos definir dois intervalos de tempo; (i) t_0 é o tempo clássico de ir de $R = R_0$ para $R = R_{ion}$; e (ii) t_1 é o tempo de ir de $R = R_{ion}$ para $R = 0$. Entretanto a probabilidade

P_r que o par decair espontaneamente em uma separação internuclear menor que R_{ion} é dada por

$$P_r = e^{-2\Gamma t_0}(1 - e^{4\Gamma t_1}); \tag{5.12}$$

onde o fator 2 leva em conta que ambos os átomos podem decair. Esta probabilidade P_r leva em conta somente a metade de um ciclo vibracional neste potencial. Para contar as varias vibrações do par no potencial devemos reescrever a eq. 5.12 como [7], ou seja,

$$P_r = \frac{\sinh(2\Gamma t_1)}{\sinh[2\Gamma(t_0 + t_1)]}; \tag{5.13}$$

onde $t_0 + t_1 \cong 0{,}746\sqrt{\mu R_0^5/2C_3} = (-\Delta_\Gamma/\Delta)^{5/6}/\Gamma$ e μ é a massa reduzida. Nós estamos interessados na situação em que $R_0 >> R_{ion}$, o qual implica que $t_0 >> t_1$ e que t_1 é independente da dessintonia. Nesta situação o número de íons produzidos por colisão (N_{ion}) será proporcional ao produto do número de pares atômicos colidindo no estado excitado (eq. 5.11) e a probabilidade de alcançar uma pequena separação internuclear (eq. 5.13), a qual é dada por

$$N_{ion} \alpha \frac{1}{\Delta^2 \sinh[2(\sin(2\Delta_\tau/\Delta)^{5/6}]} \tag{5.14}$$

se nós considerarmos somente uma única órbita no potencial de estado excitado. Então,

$$N_{ion} \; \alpha \; e^{[2(\Delta_\tau/\Delta)^{5/6}]/\Delta^2}. \tag{5.15}$$

É interessante enfatizarmos que para grandes dessintonia, o modelo de múltiplas e única órbita predizem uma dependência com a dessintonia $1/\Delta^{7/6}$ e $1/\Delta^2$. Na figura 5.24 nós mostramos que os resultados experimentais da referência [1] apresenta uma

dependência $1/\Delta^{1,05\pm0.05}$ para grandes desssintonia, o qual é muito próximo do valor predito pelo modelo de múltiplas órbitas. Na parte inferior, nós mostramos que o fitting (gráfico) para ambos modelos, onde o modelo de múltiplas órbitas mostra melhor acordo com os resultados experimentais que o modelo de única órbita. Infelizmente nós não podemos comparar o parâmetro Δ_r obtido pelo fitting com o modelo teórico por causa do alargamento da transição atômica. Além disso, nós acreditamos que o modelo de múltiplas órbitas é mais completo para descrever este processo. Este trabalho foi recentemente publicado no Physical Review A. [8] e consta no anexo A.

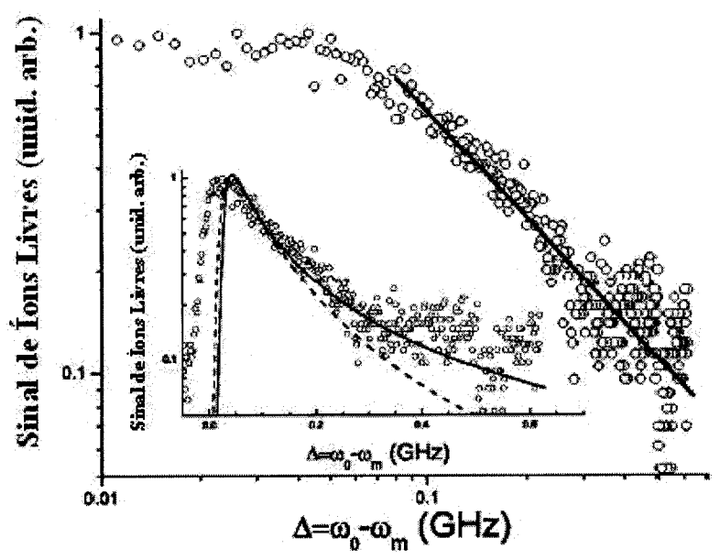

Figura 5.24: Sinal dos íons livres como função da freqüência de microondas. Para grandes dessintonias o sinal apresenta uma dependência $1/\Delta^{1,05\pm0.05}$

Bibliografia

[1] W. R. Anderson, J. R Veale and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett **80**, 249 (1998).

[2] I. Mourachko, D. Comparat, F. De Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum, V. M. Akulin and P. Pillet, et al Phys.Rev. Lett **80**,253 (1998).

[3] R. A. D. S. Zanon, K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira, and L. G. Marcassa, Phys. Rev. A, **65**, 023405(2002); A L. De Oliveira, M. W. Mancini,V. S. Bagnato and L. G. Marcassa, Phys. Rev. Lett. **90**, 143002 (2003)

[4] W. P. Spencer, A. G. Vaidyanathan and D. Kleppner, Phys. Rev. A, 380 (1982).

[5] W. Li, P. J. Tanner, and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **94**, 173001 (2005).

[6]] A l. De Oliveira, M. W. Mancini,V. S. Bagnato, and L.G. Marcassa, Phys. Rev. Lett. **90**, 143002 (2003).

[7] M. G. Peters, D. Hoffmann, J. D. Tobiason, and T. Walker, Phys. Rev. A. R906 (1994).

[8] V. A. Nascimento, M. R. Lamour, L. L. Caliri, A. L. de Oliveira and L. G. Marcassa, Phys. Rev. A **73**, 034703 (2006).

Capítulo 6

Conclusões e Perspectivas Futuras.

Através desta tese as colisões entre átomos de Rydberg frios em uma armadilha magneto óptica foram estudadas sob vários pontos de vistas. Nos últimos anos, surgiram várias interpretações de diferentes grupos de pesquisa sobre as colisões atômicas envolvendo átomos de Rydberg em uma armadilha magneto-óptica. Em geral, o processo de colisão com transferência de energia é usado para testar estas hipóteses. Uma destas interpretações considera que os processos de colisões por transferência de energia ocorrem somente quando os átomos estão estáticos comportando-se como um sólido amorfo. Isto significa que o movimento dos átomos é completamente ignorado e o processo de transferência de energia ocorre via muitos corpos.

Nosso grupo tem mais de quinze anos de tradição no estudo de colisões frias envolvendo os primeiros estados atômicos excitados, onde o movimento atômico não pode ser desprezado. Assim, foi natural que fôssemos o primeiro grupo a sugerir que tais processos em átomos de Rydberg deveriam ocorrer de forma binária e que o movimento entre os átomos desempenharia um papel importante na dinâmica da

colisão. Resultados anteriores mostravam evidências da importância do movimento e da colisão binária. Contudo, várias discussões com pesquisadores importantes na área em conferências internacionais levantaram várias questões que precisavam ser respondidas.

O objetivo original desta tese era demonstrar que as colisões ocorriam de forma binária bem como que o nosso modelo teórico semi-clássico era capaz de descrever a dinâmica da colisão. Mostramos claramente no capítulo 5 que as colisões envolvendo os níveis $nS_{1/2}$ e nD_J ocorrem via dois corpos e que as populações nos estado $nP_{3/2}/(n+2)P_J$ dependem de forma quadrática da densidade atômica dos estados iniciais para curtos tempos. Infelizmente não pudemos fazer o mesmo para as colisões do estado $32P_{3/2}$ do capítulo 4 devido a seu baixo sinal. Acreditamos que isso deva-se à baixa taxa de excitação deste estado visto que a transição $5P_{3/2} \rightarrow nP_J$ é proibida. Mas de qualquer forma, não há razão para acreditar que as colisões neste estado ocorram de alguma outra forma que não seja dois corpos.

Em contrapartida, demonstramos inequivocamente que a radiação de corpo negro desempenha um papel importante para popular os canais de saída das colisões para longos tempos de interação. Isso pode ser observado tanto no estudo de dinâmica da colisão no capítulo 4 como nos experimentos de dependência com a densidade atômica no capítulo 5. Bem, a primeira pergunta que pode surgir é "Por que não observamos esses efeitos nos experimentos anteriores?". Isso ocorreu graças às melhorias em nosso sistema experimental comparado com o sistema antigo. Entre estas melhorias podemos destacar: i) Uma definição melhor do campo elétrico na posição da armadilha devido ao uso de uma tela metálica de alta transparência, a qual permite obter grande estabilidade no campo elétrico sem bloquear os feixes da armadilha; ii) Um novo sistema laser pulsado para excitação e um sistema "*boxcar*"

para coleta do resultado; iii) Além de iniciarmos pela primeira vez a detecção de elétrons ao invés de íons, aumentando assim nossa sensibilidade.

Tanto no capítulo 4 como 5 mostramos que podíamos explicar bem o efeito da radiação de corpo negro para popular os canais de saída utilizando modelos de equações de taxa. Contudo, ainda há algumas discrepâncias que acreditamos que poderão ser explicadas quando mais estados forem considerados no modelo. E assim esperamos melhorar os resultados de evolução temporal bem como da dependência com a densidade.

Devido à existência da contribuição da radiação de corpo negro a comparação da dinâmica da colisão com nosso modelo semi-clássico foi parcialmente prejudicada. No caso das colisões do capitulo 4 encontramos uma forma engenhosa de eliminar a contribuição do corpo negro através da subtração de um sinal da população no estado $32S_{1/2}$ fora da ressonância. Isso nos permitiu obter diretamente o sinal das colisões apenas. Quando comparamos o sinal das colisões com o modelo observamos que o modelo era capaz de descrever bem o decaimento para longos tempos e apresentava discrepâncias para curtos tempos. Também observamos que para curtos tempos esta discrepância diminuía conforme nos afastávamos da ressonância.

Bem, para grandes tempos de interação o decaimento espontâneo domina completamente; assim não é surpresa que o modelo consiga reproduzir esta parte visto que decaimento é um efeito bem compreendido. As discrepâncias para curtos tempos estão completamente relacionadas com as colisões. Mostramos no capítulo 4 que no modelo original a consideração de que o parâmetro q é uma constante esta errada. Pois q depende da velocidade dos átomos no ponto de cruzamento e esta pode apresentar uma maior ou menor dispersão, dependendo se nos encontramos próximos

ou afastados da ressonância. Assim, propomos no capítulo 4 que um modelo mais realístico precisa ser considerado, onde o parâmetro q dependa explicitamente da velocidade no cruzamento. Além disso, mostramos que precisaremos calcular o parâmetro de acoplamento e que isso faremos em conjunto com o grupo teórico do Prof. Cote (Univerdidade de Connecticut).

A evolução temporal das colisões nos estado $nS_{1/2}$ e nD_J ainda continua mascarada pela influência da radiação do corpo negro. Acreditamos que esta contribuição poderá ser eliminada se medidas da evolução temporal forem realizadas em baixíssimas densidades, de modo a contribuição colisional ser desprezível. Com isso, e com modelos de equações de taxa, acreditamos que a evolução temporal oriunda das colisões poderá ser separada. De qualquer forma, acreditamos que os resultados atuais já mostram alguma semelhança com os dados processados do capítulo 4. De forma que quando diminuímos a separação energética entre os canais de entrada e saída da colisão o pico da população do produto se move para menores tempos. Esperamos que com novos resultados isso se confirme e consigamos descrever a dinâmica colisional baseado nos potenciais de ultra-longo alcance.

Apesar destes contratempos, mostramos que o nosso modelo pode ser adaptado e representar outros experimentos na literatura onde a contribuição da radiação de corpo é desprezível. No capítulo 5 mostramos que este modelo podia ser aplicado ao experimento de Li e colaboradores, o qual foi realizado no domínio da freqüência. Este sucesso em explicar este experimento abre um novo leque de experimentos envolvendo microondas que poderão ser realizados, especialmente envolvendo a manipulação destas colisões utilizando microondas e potenciais atômicos. Dentro deste contexto podemos destacar tanto a amplificação da colisão

como a supressão da mesma, como já foi demonstrado para colisões nos primeiros estados excitados.

A extensão mais importante do estudo apresentado neste trabalho é a possibilidades na aplicação de átomos de Rydberg frios no desenvolvimento na área de informação quântica; a qual tem recebido muita atenção nos últimos anos. É claro dos nossos experimentos, que se não encontrarmos uma saída para controlar este movimento atômico a aplicação destes átomos em computação quântica será comprometida. Pois o movimento destruirá a coerência da amostra. Uma possível forma de contornar este problema seria através da supressão da colisão utilizando potenciais moleculares repulsivos e microondas para acessá-los. Outra possível saída seria aprisionar os átomos em uma rede óptica eliminando assim seu movimento. Estas duas possíveis opções deverão ser investigadas em um futuro próximo por nosso grupo. Mas com certeza, durante estas investigações novas possibilidades deverão aparecer.

Anexo A

Publicações em Periódicos.

PHYSICAL REVIEW A 73, 034703 (2006)

Motion in an ultralong-range potential in cold-Rydberg-atom collisions

V. A. Nascimento, M. Reetz-Lamour,* L. L. Caliri, A. L. de Oliveira,† and L. G. Marcassa
Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, Caixa Postal 369, 13560-970, São Carlos-SP, Brazil
(Received 25 October 2005; published 14 March 2006)

In a recent letter Li *et al.* [Phys. Rev. Lett. **94**, 173001 (2005)] have studied experimentally the role of dipole-dipole interactions in the ionization of Rydberg atoms and the formation of a cold plasma. The authors associated their observations with atomic motion due to such interaction. In this work, we adapt the dynamical model proposed by De Oliveira *et al.* [Phys. Rev. Lett. **90**, 143202 (2003)] based on a two atom interaction, which reproduce qualitatively well some experimental results observed by Li and co-workers. This comparison presents clear evidences of motion in such ultralong range potential between cold-Rydberg atoms, which may be important for some applications, as quantum computation.

DOI: 10.1103/PhysRevA.73.034703 PACS number(s): 34.60.+z, 32.80.Pj

In the field of cold-Rydberg atoms several research topics have been investigated and discovered. Ultracold plasmas [1], many body diffusion of excitation [2], Rydberg state lifetime measurements [3], population of high-angular-momentum states through free charge [4], molecular crossover resonances [5], and local dipole blockade [6] are among them. Besides, there are also several interesting theoretical proposals, which have not been observed so far. As an example, transport properties of ultracold gases doped with ions [7], quantum computing [8], and the creation of "trilobite" Rydberg molecules [9]. All these experiments and proposals rely on the unique Rydberg atom properties at low temperature, which have opened up new research fields.

Recently, Li *et al.* [10] have studied experimentally the role of dipole-dipole interactions in the ionization of Rydberg atoms and the formation of a cold plasma. In a particular experiment, they prepared the Rydberg atoms in the $39S_{1/2}$ state, and using a microwave frequency, they drove the transition from a $39S_{1/2}$ to a $39P_{3/2}$ state. They observed an asymmetric line shape in the ion formation spectrum; which was explained using a two-atom picture. In their picture, the atomic pair starts the collision in the $39S_{1/2}$-$39S_{1/2}$ potential curve. At a given internuclear separation, the atomic pair absorbs a microwave photon and is excited to the $39S_{1/2}$-$39P_{3/2}$ potential curve. If the photon is set to the blue of the atomic transition, the pair will be excited to a repulsive potential and the atoms will not collide. If the microwave photon is set to the red of the atomic transition, the pair will be excited to an attractive potential and the atoms will accelerate towards each other, and at short range they will ionize, presenting an asymmetrical line shape. From such a picture, the authors have concluded that ultralong-range potentials cause cold-Rydberg atoms to move; and this effect cannot be neglected for future applications [8].

The existence of such ultralong-range potentials between Rydberg atoms was proposed by Boisseau and co-workers [11]. In that paper, the authors calculated the dispersion coefficients C_5, C_6, and C_8 for two rubidium atoms considered in the same nP state. In a more recent paper, this calculation was extended to other states as well as to other atomic species [12]. Our group has also used such a calculation to interpret the results of a time resolved experiment of energy-transfer collisions using cold-rubidium-Rydberg atoms in a magneto-optical trap (*MOT*) [13]. In such experiment, we have monitored the exit collisional channel population as a function of time due to energy transfer collision between two Rydberg atoms in the same nP state. The semiclassical model proposed takes into account the motion of the atomic collisional pairs under the influence of an ultralong-range potential and radiative decay. The comparison between the experimental results and the model shows evidences of atomic motion in such potentials.

In this paper, we adapt the model from Ref. [13] for the experiment carried out by Li *et al.* [10]. The model allows us to predict the frequency dependence of the ion signal, and the comparison with the experimental result shows a good agreement. This comparison suggests also that the Rydberg atoms move due to the dipole interaction and that several orbits may take place before the collision ends. We start by presenting our model [13,14], followed by the discussions, and the final conclusion remarks.

To briefly describe the model, we start by supposing a pair of atoms at an internuclear separation R_0 in the presence of a microwave field of frequency ω_w and intensity I. The number of colliding atomic pairs (N_{ai}) between R_0 and R_0+dR_0 excited from the $39S_{1/2}$-$39S_{1/2}$ potential curve to the $39S_{1/2}$-$39P_{3/2}$ attractive potential curve potential is proportional to

$$N_{ai} \propto 4\pi R_0^2 dR_0 \varepsilon(R_0,\omega_w,I). \tag{1}$$

The first term ($4\pi R_0^2 dR_0$) accounts for the number of colliding atomic pairs at internuclear separation R_0. The second term is the excitation rate, which is given by

$$\varepsilon(R_0,\omega_w,I) = \frac{BI_s}{1+\frac{4}{\Gamma^2}\left(\Delta+\frac{C_3}{\hbar R_0^3}\right)^2+BI_s}, \tag{2}$$

where the constant C_3 characterizes the long-range part of the excited molecular attractive potential, ω_0 is the atomic

*Permanent address: Physikalisches Institut der Albert-Ludwigs Universität, Freiburg, Germany.

†Permanent address: Universidade do Estado de São Catarina, Joinville, SC, Brazil.

 ©2006 The American Physical Society

resonant frequency, Γ is the atomic spontaneous decay rate, $\Delta=\omega_m-\omega_0$ is the microwave detuning, and I_s is the saturation intensity of the transition. If we consider that the saturation broadening is small compared with the detuning, the microwave frequency will be able to excite only the atomic pairs that obey the resonance condition $\Delta=-C_3/\hbar R_0^3$. For this condition, the number of colliding atomic pairs in the excited state will be given by

$$N_{at} \propto R_0^2 \left| \frac{d\Delta}{dR_0} \right|^{-1} \propto \Delta^{-2}. \quad (3)$$

After the excitation, the atoms will accelerate towards each other. During this motion, it is necessary to take into account the probability of the colliding pairs to survive spontaneous decay and to a small internuclear separation. At this point, it is important to define a maximum distance for the collision to produce an ion (R_{ion}). If the colliding atomic pair decays at an internuclear distance larger than R_{ion}, no ions will be produced. If the colliding atomic pair decays at an internuclear distance smaller than R_{ion}, one of the atoms will be ionized. Therefore we can define two time intervals: (i) t_0 is the classical time to go from $R=R_0$ to $R=R_{ion}$; and (ii) t_1 is the time to go from $R=R_{ion}$ to $R=0$. Therefore the probability (P_r) that a pair will decay spontaneously at an internuclear separation smaller than R_{ion} is given by

$$P_r = e^{-2\Gamma t_0}(1-e^{-4\Gamma t_1}), \quad (4)$$

where the factor of 2 accounts for the fact that either of the two atoms may decay. This probability (P_r) accounts only for half a vibrational cycle in this potential. To account for several vibrations of the pair in the potential, one has to rewrite Eq. (4) as [14]

$$P_r = \frac{\sinh(2\Gamma t_1)}{\sinh[2\Gamma(t_0+t_1)]}, \quad (5)$$

where $t_0+t_1 \cong 0.746\sqrt{\mu R_0^5/2C_3}=(-\Delta_r/\Delta)^{5/6}/\Gamma$ and μ is the reduced mass. We are interested in the situation that $R_0 \gg R_{ion}$, which implies that $t_0 \gg t_1$ and that t_1 is independent of detuning. In this situation, the number of ions produced by collisions (N_{ions}) will be proportional to the product of the number of colliding atomic pairs in the excited state [Eq. (3)] and the probability of reaching a small internuclear separation [Eq. (5)], which is given by

$$N_{ions} \propto \frac{1}{\Delta^2 \sinh[2(-\Delta_r/\Delta)^{5/6}]}. \quad (6)$$

If we consider only a single orbit in the excited state potential, then $N_{ions} \propto \exp[2(-\Delta_r/\Delta)^{5/6}]/\Delta^2$. We should point out that for large detunings, the multiple and single orbits models predict a $1/\Delta^{7/6}$ and $1/\Delta^2$ detuning dependence, respectively. In Fig. 1, we show that the experimental result from Ref. [10] presents a $1/\Delta^{1.05\pm0.05}$ dependence for large detunings, which is very close to the value predicted by the multiple orbits model. In the inset, we show also the fitting for both models, where the multiple orbits model shows better agreement with the experimental results than the single orbit model. Unfortunately, we cannot compare the parameter Δ_r obtained from the fitting with the theoretical because the broadening of the atomic transition. Nevertheless, we believe that the multiple orbits model has the main physical insights.

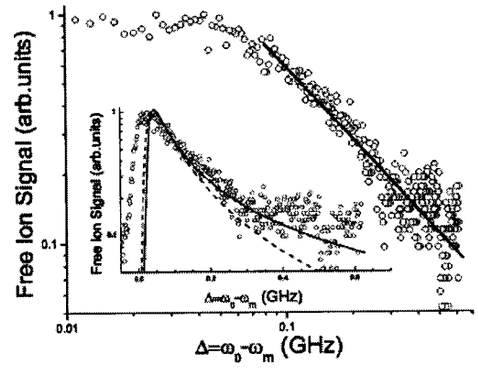

FIG. 1. Free ion spectrum as a function of the microwave frequency. For large detunings, the signal presents a $1/\Delta^{1.05\pm0.05}$ dependence. In the inset, the dashed and full lines are the model considering single and multiple orbits, respectively.

In conclusion, the results observed in Ref. [10] show clearly that the Rydberg atoms move due to the dipole interaction and several orbits may take place before the collision ends. Therefore we believe the semiclassical picture is appropriate to describe such an effect. We believe that such motion due to large internuclear forces cannot be neglected for future applications of cold-Rydberg atoms, especially involving quantum computation [8].

This work received financial support from FAPESP (Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo) and Capes/DAAD.

[1] T. C. Killian, M. J. Lim, S. Kulin, R. Dumke, S. D. Bergeson, and S. L. Rolston, Phys. Rev. Lett. **86**, 3759 (2001).
[2] I. Mourachko, D. Comparat, F. de Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum, V. M. Akulin, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **80**, 253 (1998); W. R. Anderson, J. R. Veale, and T. F. Gallagher, *ibid.* **80**, 249 (1998).
[3] K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira, R. A. D. S. Zanon, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, Opt. Commun. **184**, 385 (2000); A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, Phys. Rev. A **65**, 031401 (2002).
[4] S. K. Dutta, D. Feldbaum, A. Walz-Flannigan, J. R. Guest, and G. Raithel, Phys. Rev. Lett. **86**, 3993 (2001).

[5] S. M. Farooqi, D. Tong, S. Krishnan, J. Stanojevic, Y. P. Zhang, J. R. Ensher, A. S. Estrin, C. Boisseau, R. Côté, E. E. Eyler, and P. L. Gould, Phys. Rev. Lett. **91**, 183002 (2003).

[6] D. Tong, S. M. Farooqi, J. Stanojevic, S. Krishnan, Y. P. Zhang, R. Côté, E. E. Eyler, and P. L. Gould, Phys. Rev. Lett. **93**, 063001 (2004); K. Singer, M. Reetz-Lamour, T. Amthor, L. G. Marcassa, and M. Weidemüller, *ibid.* **93**, 163001 (2004).

[7] R. Côté and A. Dalgarno, Phys. Rev. A **62**, 012709 (2000).

[8] D. Jaksch, J. I. Cirac, P. Zoller, S. L. Rolston, R. Côté, and M. D. Lukin, Phys. Rev. Lett. **85**, 2208 (2000).

[9] C. H. Greene, A. S. Dickinson, and H. R. Sadeghpour, Phys. Rev. Lett. **85**, 2458 (2000).

[10] W. Li, P. J. Tanner, and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **94**, 173001 (2005).

[11] C. Boisseau, Ionel Simbotin, and Robin Côté, Phys. Rev. Lett. **88**, 133004 (2002).

[12] K. Singer, J. Stanojevic, M. Weidemüller, and R. Côté, J. Phys. B **38**, 295 (2004).

[13] R. A. D. S. Zanon, K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira, and L. G. Marcassa, Phys. Rev. A **65**, 022505 (2002); A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, Phys. Rev. Lett. **90**, 143002 (2003).

[14] M. G. Peters, D. Hoffmann, J. D. Tobiason, and T. Walker, Phys. Rev. A **50**, R906 (1994).

Anexo B

Artigo Submetido À Publicação: Phys. Rev. A

Measurement of the lifetimes of S and D states below $n = 31$ using cold Rydberg gas

V. A Nascimento, L.L. Caliri, A.L. de Oliveira, V.S. Bagnato, and L. G. Marcassa.
Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo,
Caixa Postal 369, 13560-970, São Carlos-SP Brazil.
(Date textdate; Received textdate; Revised textdate; Accepted textdate; Published textdate)

In this paper we have extend our previous work [A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa. Phys. Rev. A 65, 031401 (2002)] by measuring the S and D Rydberg lifetimes for ^{85} Rb for principal quantum number between $n = 26$ and $n = 31$ using a sample of cold Rydberg atoms. This new range is limited by the amplitude of the electrical field that we can generate in our present setup.

Spectroscopy can be either performed in frequency or time domain, both can provide crucial test for the quality of computed wave functions and used to optimize models of the electron distribution in complex atoms or molecules. Alkali atoms have been used both theoretically and experimentally as prototypes for accurate measurements of Rydberg state lifetimes, tests for calculations of dipole matrix elements, oscillator strengths, core polarizabilities, and influence of blackbody radiation [1]. Although the alkali atoms are among the easiest to treat theoretically, the available predictions for the Rydberg state lifetimes present variations from 5% to 15% [2–6]. The error bars of the experimental results are even worse, for $n > 15$ they can be larger than 25%[7]. This large uncertainty comes mainly from to the fact that most of the work done in this field have used conventional techniques to measure lifetimes, relying on the observation of atomic fluorescence decay of thermal atoms either in cells or in atomic beams. For levels which $n > 20$, superradiance occurs too rapidly making it impossible to perform a fair lifetime measurement. Another important effect present in these experiments is the blackbody radiation, which can appreciably alter the observed decay rates. At room temperature, the blackbody radiation can decrease the lifetime for as much as 40%. Recently, we had demonstrated the possibility to obtain a high precision measurement of the Rydberg state lifetimes by using pulsed field ionization detection on a sample of cold trapped atoms[8, 9]. In this work we measured the lifetime of S and D states of ^{85}Rb as a function of the principal quantum number n using a sample of cold atoms for $n < 31$, and therefore extending on our previous work. We start by presenting a brief description of the experimental setup, followed by the results and the discussions in which are compared with existing theory.

Our setup is as described in ref.[9], but nowadays a dispenser is used to provide the Rb vapor, instead of a reservoir. This setup is shown schematically in Fig.1. The ^{85}Rb trapping laser beam is provided by a Ti:Sapphire laser (Coherent 899) operating at $780nm$ and tuned 5 MHz to the red of the atomic $5S_{1/2}(F = 3) \rightarrow 5P_{3/2}(F' = 4)$ transition. A repumping frequency is generated by an electro-optical modulator, which one sideband is tuned to the $5S_{1/2}(F = 2) \rightarrow 5P_{3/2}(F' = 3)$ transition. The total power at the trapping transition is about 300 mW, and the light beams present a Gaussian profile with a waist of 1 cm FWHM. The coils, in an Anti-Helmholtz configuration, generate the magnetic field gradient for trapping the atomic sample with an axial field gradient of 10 Gauss/cm. The number of trapped atoms was determined by imaging their fluorescence onto a calibrated photomultiplier tube (PMT), while their dimensions were measured with a calibrated charge-coupled device camera (CCD). The atomic densities were obtained using these quantities. In typical conditions of operation the trap is loaded with 10^8 atoms in almost Gaussian spatial distribution with a waist leading to maximum peak densities of $n \sim 3 \times 10^{10}$ atoms/cm^3.The details about our experimental setup and detection technique are describe elsewhere[9]. Briefly, the cold Rb atoms are excited from the $5P_{3/2}$ to the Rydberg levels by a pulsed dye laser (Jaguar - Continuum-5 ns pulse duration, running at a 20Hz repetition rate, and 1.5 mJ/pulse) pumped by the third harmonic of a Nd:YAG laser, operating at the wavelength of 480 nm. A cloud of atoms is formed between two metal grids, separated from each other by 1.2cm. these grids consisting of nickel meshes with 95% transparency through which the MOT beams pass almost unperturbed. One of the grids is grounded while a high voltage (HV) pulse (rise time $1\mu s$, peak voltage $\sim$ 2kV) is applied in the other to ionize the Rydberg atoms. The HV pulse stays on over $2\mu s$, and the electrons produced are a detected by a channel particle multiplier placed behind the second grid, and the electron signal is integrated by a box car integrator. By varying the delay between the optical excitation and the high voltage pulse which ionize the Rydberg states, we are allowed to observe the time evolution of the Rydberg state population, and thus measure the lifetime.

The experiment runs according to the following time sequence: an external pulse delay generator (SRS, DG 535) provides the master clock and controls the switch on/off of the laser beams. The first step is to turn on a pulse with a controllable delay, which follows to the Nd:YAG laser, triggering the excitation laser shot. A fast photodiode detects the ionizing laser pulse for deriving the needed trigger for the electron signal measurement. The box car signal is collected using a computer. We use

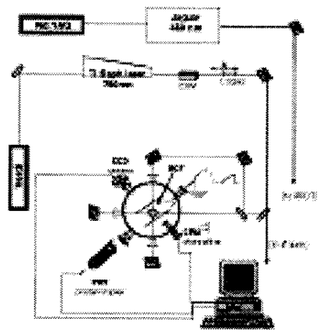

FIG. 1: Schematic experimental setup

the same procedure as before in order to avoid effects like collisions and superradiance, since as pointed out by Bates et. al.[2] and by de Oliveira et. al. [9] these two phenomena have an important contribution to the accuracy of the lifetimes measured. In the Ref. [9] is possible to obtain more details about.

Figures 2a and 2b present the measured lifetimes for S and D states as a function of the principal quantum number n. The empty triangles are the new data and the squares are the data from Ref.[9]. The error bars were taken as the variance of several obtained measured. The solid line represents the theoretical calculations from Ref.[9], which we will discuss in more details.

Due to the linewidth of our pulsed laser, the lifetime for D states is due to both fine structure levels ($D_{3/2,5/2}$) and due to the limit of the amplitude of the electrical field we can not detect principal quantum number lower than $n = 26$. To the best of our knowledge, there is still no published theoretical calculations for the Rb Rydberg states lifetimes at 300 K [10]. Hence, we compare our results with the calculations by Gounand for Rb, besides this is consistent with our previous work. However, we should point out that there is a factor of 2 between our lifetime definition and the standard definition in this field[5]; to avoid further confusion, we will use the standard definition from now on[11]. The lifetime of this states can be calculated using lifetime at 0 K and also calculating the black body radiation, and the final lifetime will be given by [1]:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} + \frac{1}{\tau_{bb}}, \qquad (1)$$

where the total lifetime is a composition of the atomic lifetime τ_0 and the action of the blackbody radiation, τ_{bb}, which has a strong dependence on the environmental

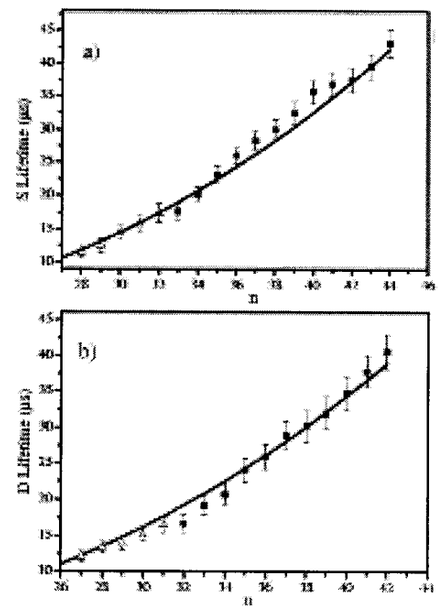

FIG. 2: a) S states lifetimes. The empty triangles are the new data and the squares are the data from Ref.[9]. The solid line represents the theoretical calculations by using Eq.(1). b) D states lifetimes, once again the empty triangles are the new data and the squares are the data from Ref. [9], and the solid line is the theoretical calculations. We have found still good agreement between theoretical and experimental data.

temperature, in our case this temperature is about 300 K. For the evaluation of τ_0 we followed the same procedure as before (ref. [9]), i.e. calculating from :

$$\tau_0 = \tau'(n - \delta)^\gamma, \qquad (2)$$

where τ' and γ depend on the atomic species and state. δ is quantum defect for a given state. τ_{bb} is calculated considering the transition rates for absorption and stimulated emission induced by the blackbody radiation. According to this theory, one can obtain τ_{bb} using

$$\frac{1}{\tau_{bb}} = \frac{4\alpha^3 K_B T}{3n^{*2}}, \qquad (3)$$

where α is the fine structure constant and $n^* = n - \delta$, with Equation (3) expressed in atomic units. As can be seen by observing Fig.2a and Fig.2b, there is a good agreement between experimental and theoretical data. In Fig. 2 the solid line is the fit obtained by using Eqs (1)-(3), and also combining Refs[18] and [5]. From the fitting, we obtain for S state $\tau' = 1.43 \pm 0.05$ and $\gamma = 2.94 \pm 0.03$, and

$\tau' = 1.9 \pm 0.07$ and $\gamma = 2.83 \pm 0.04$; which are consistent with our previously results[9].

In the figure 3, we show the behavior of lifetime by using the conventional techniques (Ref.[7]) and by using the cold atoms. It is also shown the theoretical curves by using the calculations of Ref.[5] (dot line) for T=0K, and the Eq.(3) (solid line), which takes the effect of black-body radiation into account for T=300K. As one can see, the experiment using cold atoms allows us to perform high precision lifetime measurements in a range inaccessible by conventional techniques. We should point out that for small principal quantum number the D states do not present a good quantitative agreement with this simple theory; which is not surprising due to its simplicity. This behavior can be reproduced by a more elaborated theory[6].

To summarize, we have measured the Rydberg states lifetime for S and D states relaying on the range of the principal quantum number between $n = 26$ e $n = 31$, expanding on our previous work. These results are in good agreement with the results of our previous work [9], and also there is a good agreement between the experimental data and the theoretical curves. The use of the cold atoms in a low density regime, has prove once again to be a reliable technique to obtain accurate measurements of Rydberg lifetimes. This work corroborates the results obtained by Oliveira et. al. and we think this method for sure can be used to measure the lifetimes of others alkalies. We hope that this will motivate future theoretical work in this field.

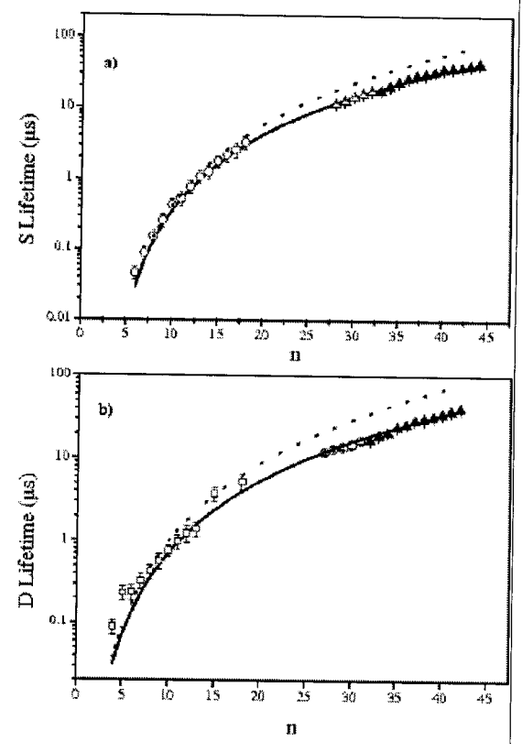

FIG. 3: Lifetime measurements of S and D states. In both figures is shown the measurements by using conventional techniques ([7]) and cold atoms technique. a) S states lifetimes. The empty squares are the new data, the up-triangles are the old data and the empty circles the measurements of Ref.[7]. The solid line represents the theoretical calculations by using Eq.(1) and the dot line represents the theoretical calculations of Ref.[5]. b) D states lifetime. Here the empty circles are the new data, and the empty squares are the measurements of ref.[7].

ACKNOWLEDGMENTS

This work is supported by **FAPESP** (Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo), **CNPq** and **CAPES**.

[1] T.F. Gallagher, *Rydberg Atoms*, Cambridge University Press, Cambridge, 1994.
[2] D.R. Bates and A. Damgaard, Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A **242**, 101 (1949).
[3] J.C. Stewart and M. Rotenberg, Phys. Rev. **140**, A1508 (1965).
[4] B. Warner, Mon. Not. R. Astron. Soc. **139**, 1 (1968); **139**, 115 (1968).
[5] F. Gounand, J. Phys. (France)**40**, 457 (1979).
[6] C.E. Theodosiou, Phys. Rev. A **30**, 2881(1984).
[7] M. Hugon, F. Gounand, and P.R. Fournier, J. Phys. B **11**, L605 (1978); F. Gounand, M. Hugon, P.R. Fournier, and J. Berland, ibid. **12**, 547 (1979); F. Gounand, M. Hugon, and P.R. Fournier, J. Phys. (France) **41**, 119 (1980).
[8] K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira, R. A. D. S. Zanon, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, Opt. Commun. **184**, 385 (2000)
[9] A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, Phys. Rev. A **65**, 031401 (2002).
[10] C. E. Theodosiou, *private communication*.
[11] In our previous work, our lifetime definition has a factor of 2 different from the standard defifinition in this field. But a mistake of a factor of 2 in the black body effect has canceled the previous factor, and the comparison was not compromissed.
[12] S.G.Kuzmin and T.M. O'Neil, Phys.Rev.Lett. 88, 0655003(2002).
[13] Jens Herbig, Tobias Kraemer, Michael Mark, Tino We-

ber. Cheng Chin, Hanns-Christoph Nägerl, and Rudolf Grimm, Science **301**, 1510 (2003); N. Zahzam, T. Vogt, M. Mudrich, D. Comparat, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **96**, 023202 (2006) .

[14] M. D. Lukin, M. Fleischhauer and R. Coté, Phys. Rev. Lett. **87**, 037901 (2001).

[15] T. C. Killian, M. J. Lim, S. Kulin, R. Dumke, S. D. Bergeson, and S. L. Rolston, Phys. Rev. Lett. **86**, 3759 (2001); C. O. Reinhold, S. Yoshida, J. Burgdörfer, B. E. Tannian, C. L. Stokely and F. B. Dunning, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **34**, L551(2001).

[16] A. L. de Oliveira, M. W. Mancini, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa, Phys. Rev. Lett. **90**, 143002 (2003); R. A. D. S. Zanon, K. M. F. Magalhães, A. L. de Oliveira, and L. G. Marcassa, Phys. Rev. A **65**, 023405 (2002); I. Mourachko, D. Comparat, F. de Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum, V. M. Akulin, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **80**, 253 (1998); W. R. Anderson, J. R. Veale, and T. F. Gallagher, **ibid. 80**, 249 (1998).

[17] W. A. Chupka, J. Chem. Phys. **99**, 5800 (1993); F. Merkt and R. N. Zare, J. Chem. Phys. **101**, 3495 (1994); E. Vliegen,1 H. J. Wörner, T. P. Softley, and F. Merkt, Phys. Rev. Lett. **92**, 033005 (2004)

[18] W.E. Cooke and T.F. Gallagher, Phys. Rev. A **21**, 588 (1980).

FIGURE CAPTIONS

Fig. 1 - Schematic experimental setup

Fig. 2 - a) S states lifetimes. The empty triangles are the new data and the squares are the data from Ref.[9]. The solid line represents the theoretical calculations by using Eq.(1). b) D states lifetimes. There is a good agreement between theoretical and experimental data.

Fig. 3 - Lifetime measurements of S and D states. In both figures is shown the measurements by using conventional techniques ([7]) and cold atoms technique. a) S states lifetimes. The empty squares are the new data, the up-triangles are the old data and the empty circles the measurements of Ref.[7]. The solid line represents the theoretical calculations by using Eq.(1) and the dot line represents the theoretical calculations of Ref.[5]. b) D states lifetime.