Universidade de São Paulo
Instituto de Física de São Carlos

Jorge Douglas Massayuki Kondo

***Ressonâncias moleculares em estados nP de
átomos de Rydberg frios***

São Carlos

2010

Jorge Douglas Massayuki Kondo

Ressonâncias moleculares em estados nP de átomos de Rydberg frio

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

Área de Concentração: Física Básica.

Orientador: Prof. Dr. Luis Gustavo Marcassa

SÃO CARLOS

2010

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

Ficha catalográfica elaborada pelo Serviço de Biblioteca e Informação IFSC/USP

Kondo, Jorge Douglas Massayuki.

Ressonâncias moleculares em estados Np de átomos de Rydberg frios.
/ Jorge Douglas Massayuki Kondo; orientador Luis Gustavo Marcassa - São Carlos, 2010.

90p.

Dissertação (Mestrado – Programa de Pós-Graduação em Física – Área de concentração: Física Básica) – Instituto de Física de São Carlos da Universidade de São Paulo.

1. Átomos de Rydberg frios. 2. Armadilha magneto-óptica . 3. Transferência de populações. 4. Estados Np de Rydberg. 5. Potenciais moleculares. I. Título.

FOLHA DE APROVAÇÃO

Jorge Douglas Massayuki Kondo

Dissertação apresentada ao Instituto de Física de São Carlos da Universidade de São Paulo para obtenção do título de Mestre em Ciências.
Área de Concentração: Física Básica.

Aprovado(a) em: 12.11.2010

Comissão Julgadora

Prof(a). Dr(a). Luis Gustavo Marcassa

Instituição: IFSC/USP

Assinatura

Prof(a). Dr(a). Miled Hassan Youssef Moussa

Instituição: IFSC/USP

Assinatura

Prof(a). Dr(a). Sandra Sampaio Vianna

Instituição: UFPE

Assinatura

À minha avó Katsuko Ishikawa Kondo

Agradecimentos

A tarefa de agradecer as pessoas que de alguma maneira ajudaram na realização desse trabalho, não é fácil e em certo sentido é injusta. Não há como citar todos os envolvidos no trabalho diário de estudo e pesquisa, que por vários anos vem tomando conta de minha vida acadêmica, neste sentido nenhuma lista de agradecimentos é completa. No entanto, não há como esquecer o incansável esforço de meus pais Claudete e Nobuyuki na luta para proporcionar educação de qualidade a mim e a meus irmãos. Não posso em especial deixar de agradecer a minha avó Katsuko Ishikawa Kondo e ao meu irmão Yunes com quem aprendi grandes lições de respeito, bondade e paciência. Aos que seguem abaixo, deixo um singelo agradecimento por extenso. A todos, deixo um forte abraço.

Aos meus amigos Osny Albuquerque, Antônio Neto, Francisco Bauke, Pedro Ivo, Carlos Escanhoela, Diogo da Costa, Maria Luiza, Marcio Augusto, Carlos Abreu, Guilherme Prata, Ruben Aucasse, Gabriel Luchini, Hisao Moriya, Oigres Bernadinelli, Thiago Mosqueiro, Mariana Odashima e tantos outros que sempre me apoiaram em momentos difíceis, pelo companheirismo e discussões bem humoradas.

Aos meu colegas de laboratório Bruno Marangoni, Jader Cabral, Luis Felipe e Renato Menegatti que tanto me ajudaram na realização dos experimentos.

Ao meu orientador Prof. Dr. Luis Gustavo Marcassa e sua esposa Luciana, pela oportunidade de realizar este trabalho, pela paciência, dedicação e por fornecer todos os meios necessários à pesquisa.

Ao serviço de biblioteca e informação Bernhard Gross e ao serviço de Pós-graduação IFSC.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) e aos nossos contribuintes, que possibilitaram a realização deste projeto.

Muito Obrigado!

*“Eu poderia viver recluso numa casca de noz
e me considerar rei do espaço infinito...”*

*Shakespeare,
Hamlet, Ato 2, Cena 2*

Resumo

KONDO, J. M. **Ressonâncias moleculares em estados nP de átomos de Rydberg frios**. 2010. 90p. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2010

Neste trabalho estudamos a interação entre átomos de Rydberg no estado nP e sua dependência com o campo elétrico dc. Estes estados apresentam ressonâncias Föster para um número quântico principal n menor que 37. Nestes processos de ressonância um par atômico no estado nP muda para um par $nS + (n + 1)S$. Realizamos dois experimentos de evolução temporal para $32 \leq n \leq 36$. No primeiro investigamos a dependência da taxa de transferência de população N_{nS} em função do número quântico principal n . E no segundo estudamos a transferência de população para um estado fixo de $n = 33$ em função do campo elétrico. Além disso, estudamos a dependência da população no estado $33S$ em função da densidade de átomos de Rydberg no estado $33P$. Estes resultados nos permitem observar duas contribuições distintas, uma linear relacionada a radiação de corpo negro e uma quadrática ligada a interação de dois corpos. Estes resultados confirmam o modelo de taxa para o efeito da radiação de corpo negro.

Palavras-chave : átomos de Rydberg frios, armadilha magneto-óptica, transferência de populações, estados nP de Rydberg, potenciais moleculares.

Abstract

KONDO, J. M. **Molecular resonances in nP states of cold Rydberg atoms**. 2010. 90p. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2010.

In this work we studied the role of Rydberg atoms interactions in the nP state and the dc electric field dependency of this process. The nP state shows Föster resonances for principal quantum number less than 37. In this resonance process, an atomic pair in nP state changes to a pair $nS + (n + 1)S$. We have performed two time evolution experiments for $32 < n < 36$. In the first one we have investigated the N_{nS} population transfer rate for a variable principal quantum number n . In the second we have study the population transfer for a fixed $n = 33$, by varying an electric field. Moreover, we observed the density dependency of the population in the $33S$ state by varying the nP state atomic density. The results allow us to observe two distinct contributions, a linear contribution related with the black body radiation and a quadratic one connected with two body process. The results agree well with the rate model used to treat the black body radiation.

Keywords: cold Rydberg atoms, magneto-optical trap, population transfer, nP Rydberg States, molecular potenciales.

Lista de Figuras

- Figura 2.1** – Sinal de elétrons resolvido no tempo resultado da detecção por campo de ionização seletiva para a excitação do estado $32S$, para um tempo de $100ns$. O *inset* mostra a razão entre $N_{32P_{3/2}}$ e $N_{32S_{1/2}}$ em função do campo elétrico estático. A transferência de população de $N_{32S_{1/2}}$ para $N_{32P_{3/2}}$ é de $\sim 2.8\%$ **33**
- Figura 2.2** – Comportamento quadrático da população $N_{nP_{3/2}}$ em função da densidade de $\rho_{nS_{1/2}}$ os pontos são dados experimentais e a linha é o ajuste com ρ_{n32S}^{δ} . O *inset* mostra o comportamento do estado $32P_{3/2}$ em função da densidade de $32S_{1/2}$ **34**
- Figura 2.3** – (a) Curvas de potenciais moleculares para estados ao redor de $32S + 32S$ resultado da diagonalização em função da distância interatômica R considerando efeito Stark dc, interação dipolo-dipolo, dipolo-quadrupolo, quadrupolo-quadrupolo, para $M=1$, $\epsilon_b = 500mV$. (b) Projeção da mistura entre os estados, $C(R) = |\langle 32S + 32S | 32P + 31P \rangle|$ **35**
- Figura 2.4** – Sinal de elétrons, com tempo entre excitação e detecção de $100 ns$ para o estado com $n= 37$, a transferência de população nesta escala de tempo é de aproximadamente 10% **37**
- Figura 2.5** – População no estado $39P$, N_{39P} , em função da densidade do estado inicial $37D$, ρ_{37D} , podemos observar a dependência quadrática entre os estados, um ajuste realizado com ρ_{37D}^{δ} , mostra que $\delta = 1.9 \pm 0.1$ **38**
- Figura 2.6** – (a) Curvas de potenciais moleculares com interações multipolares próximos ao estado $37D + 37D$, com campo elétrico estático $\epsilon = 500mV/cm$, $M=0$, (b) $\epsilon = 2 V/cm$, o efeito Stark altera a forma e os cruzamentos dos potenciais..... **39**
- Figura 2.7** – Região de avoid-crossing com estado $37D + 37D$, (a) com contribuição quadrupolar, aparecimento de um avoid-crossing, (b) apenas contribuição dipolar, perda do avoid-crossing..... **40**
- Figura 2.8** – Comparação entre os dados experimentais e a teoria para a taxa de formação pelo processo de dois corpos, círculo claros corresponde aos dados com campo elétrico de $500 mV/cm$ e círculo escuros ao campo elétrico de $2 V/cm$ **41**
- Figura 2.9** – Mapa Stark do estado $37D + 37D$ e estados próximos, a figura mostra o cruzamento entre os estados, e a linha continua é a população de $39P$ em função do campo elétrico..... **42**

- Figura 2.10** – Evolução temporal do estado $31P$ com excitação do estado inicial $29D$ com $\epsilon = 0.5 \text{ V/cm}$, a curva pontilhada mostra a filtragem dos dados da contribuição devido à radiação de corpo negro, a população N_{up} serve como parâmetro de comparação com o modelo teórico, o *inset* da figura descreve qualitativamente a evolução temporal dos estados atômicos..... **43**
- Figura 2.11** – Taxa de crescimento das populações de nP em função de n , os pontos experimentais reflete a inclinação da evolução temporal do estado, já subtraídos a contribuição de corpo negro..... **44**
- Figura 3.1** – Quebra da degenerescência pela aplicação de campo magnético estático (efeito Zeeman), σ^+ e σ^- são polarizações dos fótons absorvidos ou emitidos na transição de $m_s = 0$ para $m_p = 1$ e -1 respectivamente..... **48**
- Figura 3.2** – Esquema da disposição das bobinas de campo magnético na configuração anti-helmholtz, e feixes de lasers nas polarizações das transições por regra de dipolo..... **49**
- Figura 3.3** – Esquema da montagem experimental, da configuração de absorção saturada e sistema de aprisionamento..... **50**
- Figura 3.4** – Diagrama do processo de confinamento atômico, com níveis hiperfinos do Rb^{85} **51**
- Figura 3.5** – Foto da câmara de aprisionamento e bobinas anti-helmholtz (a) e da (AMO) com átomos de Rubídio 85 utilizando câmera CCD (b)..... **52**
- Figura 3.6** – Interior da câmara de aprisionamento, com grades paralelas para aplicação de campo elétrico estático e pulso de ionização..... **54**
- Figura 3.7** – Perfil do sinal de alta tensão, calibrado para ionização do estado $34S_{1/2}$; o sinal possui tempo de subida de $\cong 2.6\mu s$, aplicado $1.1\mu s$ após a excitação da amostra para o estado $34P_{3/2}$ **55**
- Figura 3.8** – Perfil do sinal de elétrons para ionização dos estados $|35S_{1/2}\rangle$, $|34S_{1/2}\rangle$ e $|34P_{3/2}\rangle$. O tempo entre excitação e o pulso de ionização é de $1.1\mu s$. Excitação com campo elétrico dc de $E = 6.32 \pm 0.03 \text{ V/cm}$ **55**
- Figura 3.9** – Perfil do sinal de elétrons para ionização dos estados $|34S_{1/2}\rangle$, $|33S_{1/2}\rangle$, $|33P_{3/2}\rangle$ e $|33N_{up}\rangle$. O tempo entre excitação e o pulso de ionização é de $8.1 \mu s$. Excitação com campo elétrico dc de $E = 8.94 \pm 0.08 \text{ V/cm}$. **56**
- Figura 3.10** – Sequência temporal do experimento, o pulso de ionização é ligado após um tempo Δt do pulso do laser de excitação..... **57**

Figura 3.11 – Varredura dos estados de Rydberg em função do comprimento de onda do laser de excitação.O estado 36P é alcançado devido a ação de um campo elétrico residual de fundo do sistema.....	58
Figura 3.12 – População do estado 36P em função do campo elétrico estático, procedimento aplicado na medida do campo elétrico residual do sistema.....	59
Figura 4.1 – Os gráficos de (a-e) se referem ao estados com número quântico fixo de 32 a 36 respectivamente e mostram a população de nS em função do campo elétrico para o processo $nP_{3/2} + nP_{3/2} \rightarrow nS_{1/2} + (n + 1)S_{1/2}$, os três picos da esquerda para direita referem-se as três projeções de m_j ; $ m_j = 1/2 + 1/2$, $ m_j = 1/2 + 3/2$ e $ m_j = 3/2 + 3/2$ respectivamente.....	62
Figura 4.2 – Diagrama de energia dos pares atômicos $32P_{3/2} + 32P_{3/2}$ e $32S_{1/2} + 33S_{1/2}$ e cruzamentos com $\Delta E = 0$ para as projeções de $m_j = 3/2$, $ m_j = 1/2 + 1/2$, $ m_j = 1/2 + 3/2$ e $ m_j = 3/2 + 3/2$. O zero de energia foi tomado no ponto de ressonância $ m_j = 1/2 + 3/2$	63
Figura 4.3 – Posições de ressonância em função da energia relativa, a curva verde é o ajuste da curva experimental realizada com a soma de 3 funções Lorentzianas.....	65
Figura 4.4 – O gráfico mostra as larguras de linha e distância entre picos não adjacentes das ressonâncias em unidade de energia (MHz) em função do número quântico principal n	66
Figura 4.5 – Evolução temporal do estado 35S ao excitar estados 35P. A curva relativa a excitação de estados mais energéticos N_{up} foi multiplicada por 8 para melhor observação na mesma escala.....	67
Figura 4.6 – Diagrama de estados para o modelo de transições devido a interação com o campo de radiação de corpo negro, 21 estados são considerados para $l = 0,1$ e 2. Os estados são mostrados em ordem de energia.....	68
Figura 4.7 – Comparação dos dados experimentais para efeito de corpo negro com dados de evolução temporal no intervalo $32 \leq n \leq 36$. A simulação concorda muito bem com o experimento como exemplo $n = 36$	70
Figura 4.8 – Filtragem dos dados experimentais pela subtração da contribuição da radiação de corpo negro encontrada no modelo de taxas para o estado 32S.....	71
Figura 4.9 – Evolução temporal para n $32 \leq n \leq 36$ a evolução é graficada num intervalo de tempo de 100 ns a $5\text{ }\mu\text{s}$, e apresenta saturação em $\sim 2.6\text{ }\mu\text{s}$	72

- Figura 4.10** – Taxa de formação (derivada da curva de evolução temporal) para tempo máximo de $2.5 \mu s$, em função do número quântico principal e larguras de linhas obtidas dos parâmetros dos ajustes com lorentzianas..... **73**
- Figura 4.11** – Evolução temporal da excitação inicial do estado $33P$ e subsequente observação do estado $33S$ para diversos campos elétricos próximos a ressonância.....**74**
- Figura 4.12** – Taxa de crescimento do estado $33S$ em função do campo elétrico para um tempo máximo de $5 \mu s$. O campo de ressonância deste estado concorda com o máximo da taxa de crescimento no campo elétrico $E = 8.94 \pm 0.08 V/cm$ **75**
- Figura 4.13** – Comparação entre as posições de ressonância e taxa de crescimento das populações para $n = 33$, as derivadas são obtidas para um tempo de $2.5 \mu s$ **73**
- Figura 4.14** (a) Dependência da população $33S$ em função de ρ_{33P} para tempo de $100 ns$ após a excitação do estado $33P$. (b) – Mesma dependência entre populações, com tempo de $10 \mu s$ **79**
- Figura 4.15** – As curvas mostram a dependência da população em $33S$ com relação ao estado alvo $33P$. As respectivas derivadas representam a taxa com que o estado $33P$ realiza transições para o estado $33S$ devido à interação com o campo de radiação térmica..... **79**
- Figura 4.16** – Taxa de transferência de população de $33P$ para $33S$ em função do tempo entre excitação e detecção. Cada ponto é referente a inclinação das curvas teóricas fig. 4.15 obtidas do modelo de equações de taxas.....**80**
- Figura 4.17** – Parâmetro linear α referente às contribuições de corpo negro para o estado $n = 33$ com campo elétrico fora da ressonância $E = 9.20 \pm 0.08 V/cm$, e na condição de ressonância $E = 8.89 \pm 0.08 V/cm$**81**
- Figura 4.18** – Parâmetro quadrático β referente a interação de dois corpos para o estado $n = 33$ com campo elétrico de ressonância $E = 8.89 \pm 0.08 V/cm$ (quadrados pretos), e fora dela $E = 9.20 \pm 0.08 V/cm$ (losangos vermelhos)..... **81**

Lista de Tabelas

- Tabela 4.1** – Campo elétrico de ressonância para as três projeções de momento angular m_j obtidos das simulações para o intervalo de n 32 a 36..... **64**
- Tabela 4.2** – Respectivas posições de ressonância experimentais em função do campo elétrico estático para $32 \leq n \leq 36$, para as três projeções de momento angular m_j **64**
- Tabela 4.3** – Posições de campo elétrico utilizados no experimento de evolução temporal no intervalo $32 \leq n \leq 36$ correspondente ao ultimo pico de cada ressonância fig.4.1(a-e)..... **72**

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO	23
2 REVISÃO DA LITERATURA	31
2.1 Efeito Stark ac na excitação de pares atômicos de Rydberg.....	32
2.2 Efeito Stark dc na excitação de pares atômicos de Rydberg	36
3 MONTAGEM EXPERIMENTAL	47
3.1 Armadilha magneto óptica (AMO)	47
3.2 Excitação e detecção dos estados de Rydberg	52
3.3 Aquisição dos dados e sequência temporal.....	57
3.4 Campo elétrico Residual	58
4 RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	61
4.1 Campo elétrico dc e posições de ressonâncias.....	61
4.2 Evolução temporal	67
4.2.1 Eliminação do efeito da Radiação de corpo negro	67
4.2.2 Evolução temporal em função do número quântico principal.	71
4.2.3 Evolução temporal em função do campo elétrico dc.....	74
4.3 Transferência de população em função da densidade atômica	77
5 CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS	83
REFERÊNCIAS.....	87

1 INTRODUÇÃO

A moderna investigação científica em busca do conhecimento da estrutura da matéria tem raízes muito antigas. O Homem desde os primórdios da civilização vem se fazendo a mesma pergunta: Do que somos feitos?

O primeiro modelo concreto da teoria atômica foi proposto pelos gregos Leucipo e Demócrito, os quais acreditavam que tudo era constituído de pequenas esferas maciças e indivisíveis. Estas esferas se comportavam como um turbilhão de peças de um quebra-cabeça, onde algumas peças por possuírem características semelhantes se encaixavam, outras por serem muito diferentes não encaixavam ou encaixavam fracamente umas as outras. Assim, nasceu o primeiro átomo e logo uma multiplicidade de novas questões (1). As principais delas são: Do que são feitos? E como atuam os mecanismos de suas interações?

Por volta do ano de 1800 d.C. um novo fôlego é dado, com o desenvolvimento do método científico, da era da industrialização, e sob o véu de inúmeras descobertas na matemática, física, química, biologia etc. John Dalton revive o modelo atômico grego através da lei das proporções constantes. Logo, um novo conjunto de novas interpretações acerca do mundo atômico emergia e grandes nomes da ciência contribuíram com seu desenvolvimento.

No final do século XIX J.J. Thomson propõe um novo modelo atômico, baseado em seus experimentos sobre o elétron. O famoso modelo de pudim de ameixas propunha um meio semelhante a uma gelatina como a carga positiva e que possuía distribuídas em sua superfície partículas negativas, os elétrons. Ernest Rutherford ex-aluno de Thomson, por volta de 1911, baseado em experimentos de espalhamento de partículas α obtém resultados conflitantes, e descobre que toda a massa do átomo deve estar localizada em seu centro, o núcleo, e que seu raio deve ser muito menor que o raio atômico.

Rutherford propõe um novo modelo, o modelo planetário, o que não estava em desacordo com as descobertas de Newton sobre a mecânica. Porém, esse modelo entrava em conflito com outra grande evolução da ciência naquele período da história, o

eletromagnetismo. Este trazia um problema ao modelo de Rutherford, segundo o qual um corpo carregado eletricamente emite radiação eletromagnética ao ser acelerado, e no modelo de Rutherford claramente algo não estava correto.

O cenário científico do início do século XX era, contudo, muito promissor. Os postulados de Bohr dentre eles a quantização do momento angular $L = n\hbar$, explicavam de maneira satisfatória os resultados experimentais. Entre eles podemos citar as linhas espectrais do hidrogênio e a estabilidade atômica, abrindo as portas para um novo e estranho mundo, o mundo da mecânica quântica. Os postulados de Bohr, porém continuavam a ser medidas emergenciais. E apesar de sua teoria explicar experimentos como os de Balmer, Lyman, Rydberg e inúmeros outros de forma simples ainda havia questões em aberto.

Albert Einstein uma vez disse não acreditar que Deus jogasse dados com o universo, uma crítica as bases probabilísticas em que o arsenal matemático da mecânica quântica crescia. Entretanto, com o desenvolvimento das idéias elegantes de Erwin Schrödinger em sua descrição ondulatória da mecânica quântica, paralelamente ao desenvolvimento da mecânica matricial de Heisenberg, solidificaram as bases do modelo atômico de Bohr. A mecânica quântica encontra seu lugar, e é responsável pelo grande avanço tecnológico pelo qual nossa sociedade vem passando. Seu formalismo é aplicado em diversos ramos da ciência, e tem se mostrado uma poderosa ferramenta para a melhor compreensão dos processos que ocorrem em nosso dia a dia.

Uma pergunta fica ainda sem uma resposta definitiva: como nesse mundo quântico os átomos interagem entre si? E ainda mais, como essas interações evoluem no tempo? Sabemos atualmente que a equação para esses sistemas é simples e pode ser descrita pela equação de Schrödinger. O que se torna um desafio é a solução dessas equações que para maioria dos casos é desconhecida ou no mínimo demandam um trabalho computacional infinito para convergência de soluções numéricas. Atualmente para estudar esse grande número de interações diversos experimentos estão sendo realizados, em especial aqueles que envolvem processos de colisões atômicas produzem grandes quantidades de informações, e nos dão pistas para compreender melhor o átomo.

Átomos fora do estado fundamental ou átomos de Rydberg possuem características que os tornam perfeitos candidatos a experimentos de colisões atômicas. Dentre as principais características destes sistemas (2) podemos citar: i) grande seção de choque que é proporcional a n^4 . ii) possuem raios gigantescos, muitas vezes com milhares de raios de Bohr, levando a interações de longas distâncias, geralmente da ordem de micrometros. iii) tem grande polarizabilidade e momentos de dipolo, ficando suscetíveis a interações com campos elétricos relativamente baixos, radiação de microondas, radiofrequências, etc. iv) tem separação energética pequena entre os estados $\propto n^{-3}$, possibilitando o estudo da interação da radiação de corpo negro nestes sistemas. v) possuem tempos de vida extremamente longos, usualmente da ordem de milissegundos.

Obter átomos excitados não era uma tarefa fácil. Contudo, em 1966 com o desenvolvimento dos lasers de corante de maneira independente por P. Sorokin e F.P. Schäfer tornou o trabalho possível (3). A produção dos estados de Rydberg em laboratório em grande quantidade tornou-se um trabalho não muito complicado, porém a banda de espectro desses estados ainda era muito larga, resultado do efeito Doppler devido ao movimento atômico.

Na década de 80 o primeiro experimento de confinamento atômico com base nos trabalhos de Richard Cook sobre pressão de radiação (4-5) e confinamento magnético foram realizados por Raab e colaboradores (6), com a construção da primeira armadilha magneto-óptica. O grupo de Raab pôde aprisionar aproximadamente 10^7 átomos numa armadilha de 1mm de diâmetro a temperaturas da ordem de centenas de microkelvin. A partir deste momento átomos neutros puderam ser confinados espacialmente, livres do efeito Doppler, e os lasers de corante tornaram possível estudar nestes sistemas estados de Rydberg.

O interesse na investigação dos estados de Rydberg é devido à grande quantidade de informação que esses sistemas fornecem, visto que suas interações são importantes em diversas áreas da física. Em geral, o estudo dos estados de Rydberg abrangem uma grande variedade de pesquisas, que envolvem o estudo de potenciais moleculares (7-10), transferência de energia (11-13), princípio da correspondência (14-15), mapeamento da estrutura Stark (16), medidas de tempos de vida (17-18), astrofísica (19), física de plasmas ultra-frios (20-21), processos de superradância (22-23), Eletrodinâmica Quântica – QED

(24), bloqueio (25-26) e anti-bloqueio de dipolo (27), computação quântica (28-31), processos de interação de muitos corpos (32) etc.

Neste trabalho, lidaremos com átomos de Rydberg com apenas um elétron em sua camada de valência, conhecidos como átomos hidrogenóides. Como exemplo, podemos citar a família de átomos alcalinos como o Césio (Cs), Sódio (Na), Lítio (Li), Rubídio (Rb) etc. Especificamente, em nossos experimentos utilizamos estados de Rydberg de átomos de Rubídio 85.

Atualmente bastante atenção é dada aos estados de Rydberg como proposta de sistemas ideais no estudo de viabilidade da computação quântica, e implantação de portas lógicas. Uma vez que, a interação a longas distâncias em conjunto com longos tempos de vida destes sistemas, pode levar a estados emaranhados (24-26, 28-31, 33-35) com a criação de Qubits. O processo de formação de bits quânticos em armadilhas de dipolo, por meio do emaranhamento criado pelo bloqueio dipolar é abordado pelo grupo do Prof. Gaëtan (25).

Para implementar algoritmos quânticos, portas lógicas e processos controláveis de emaranhamento os níveis de Rydberg devem ser acessados com alto grau de confiabilidade e estabilidade. Entretanto, o acesso a estes níveis de Rydberg é influenciado por interações com outros átomos de Rydberg que perturbam o sistema levando a decoerência.

Os primeiros experimentos envolvendo o estudo de colisões entre átomos de Rydberg ultra-frios foi realizado no fim dos anos 90 (36-37) explorando a interação entre estados nP . Neste processo o estado nP é excitado e logo em seguida se realiza a detecção do estado nS , o esquema pode ser expresso por $nP + nP \rightarrow nS + (n + 1)S$. A interpretação dos resultados experimentais seguiram duas correntes distintas. A primeira considera a interação de muitos corpos de um gás de Rydberg congelado e despreza qualquer tipo de movimento atômico. Neste caso, a interação ocorre somente devido a mudança de energia interna dos estados, essa interpretação pode ser vista nos trabalhos independentes de Mourachko, Tanner e Gallagher (11-13).

Anderson e colaboradores (36) propuseram um mecanismo de interação dipolar entre átomos de Rydberg que dependia da temperatura da amostra. Ou seja, à temperatura de 300K

o processo colisional era exclusivamente de dois corpos e a $300 \mu K$ o sistema estaria estático e a interação seria somente devido a muitos corpos.

Contudo, outra interpretação dos processos de interação é a forte dependência com o movimento atômico. Nesse caso, dois átomos de Rydberg sob ação de um potencial atrativo, são acelerados até colidirem em certas distâncias internucleares, levando a mudança de estado dos pares com ganho de energia cinética. Overstreet e colaboradores (38) trabalhando com átomos ultrafrios de Cs numa armadilha magneto-óptica mediram o ganho de energia cinética destes processos, o comportamento então seria exclusivamente devido à interação de dois corpos.

Nosso grupo vem interpretando os processos como interações de dois corpos (7, 10), como apresentado no trabalho de Nascimento e colaboradores (9). Os mesmos resultados foram obtidos por Li e colaboradores (39), tanto em processos de transferência de energia como interação com a radiação de corpo negro.

Seguindo esta linha de investigação nosso grupo realiza experimentos com processos colisionais entre átomos de Rydberg de ^{85}Rb e prova cada vez mais que os processos que envolvem potenciais moleculares explicam os diversos resultados experimentais. Atualmente a montagem experimental de nossa armadilha conta com um excelente controle de campo elétrico estático, abrindo caminho para investigação da ação do efeito Stark dc nesses processos de interação.

Descobertas atuais, em relação ao conhecimento detalhado de potenciais, levaram a novas interpretações dos resultados, em 2009 no trabalho de Nascimento e colaboradores (8) foi detectada população no estado $nP_{3/2}$ após a excitação do estado $nS_{1/2}$. Tal resultado poderia ser naturalmente derivado de colisões binárias, porém, o trabalho de Singer (40) mostrou que potenciais entre átomos de Rydberg no estado $nS_{1/2}$ são repulsivos. Dois importantes fatores contribuíram para elucidar o fenômeno, o primeiro é a mistura entre potenciais moleculares dos pares de estados $nS_{1/2} + nS_{1/2}$ e $nP_{3/2} + (n+1)P_{3/2}$ na região interna do potencial devido a efeitos multipolares. O segundo é o efeito Stark ac que faz com que o estado $5P_{3/2} + nS_{1/2}$ seja ressonante com $nP_{3/2} + (n+1)P_{3/2}$ levando a excitação direta desses estados moleculares (38). Nos cálculos foram considerados contribuições de

dipolo-dipolo, quadrupolo-dipolo e quadrupolo-quadrupolo bem como efeito Stark dc, e os resultados são encontrados em (8).

Resultados mais recentes do trabalho de Jader e colaboradores (41), onde o processo colisional estudado foi $nD + nD \rightarrow (n + 2)P + (n - 2)F$, com detecção do estado $(n + 2)P$ com tempo entre excitação e detecção no intervalo $0.1\mu s \leq \Delta t \leq 8\mu s$. Mostrou que o conhecimento dos potenciais moleculares, levando-se em conta efeitos Stark dc, interações multipolares e o correto mapeamento das regiões de cruzamentos proibidos, pode explicar o processo de transferência de populações. O processo se baseia no modelo semi-clássico de transições diabáticas de Landau-Zener, tal descrição baseada em primeiros princípios tem ótima concordância com os dados experimentais. O trabalho também mostrou que a interação com a radiação de corpo negro não pode ser desprezada. Para a correta interpretação dos resultados buscamos a colaboração do grupo do Prof. Shaffer, da Universidade de Oklahoma, que realizou as simulações numéricas dos diversos potenciais moleculares envolvidos no experimento.

Neste trabalho voltamos a investigar o processo de interação entre estados $nP_{3/2}$, ou seja, $nP_{3/2} + nP_{3/2} \rightarrow nS_{1/2} + (n + 1)S_{1/2}$, com detecção do estado $nS_{1/2}$. Este processo possui cruzamentos de energia entre os estados, com a aplicação de campo elétrico estático, levando a processos de colisões ressonantes. Nosso experimento evidencia a importância da excitação de potenciais moleculares, o efeito Stark dc do campo elétrico aplicado na amostra e a importância da radiação de corpo negro para tempos longos. Propusemos um modelo de taxas para a influência da radiação de corpo negro, e um procedimento para eliminar dos dados experimentais essa contribuição, mostramos também a clara contribuição dos processos binários no experimento.

No capítulo 2 apresentaremos os aspectos teóricos dos dois últimos experimentos de nosso grupo, o primeiro deles envolve o processo de excitação nS e subsequente detecção do estado $nP_{3/2}$, o segundo é a observação de ressonâncias moleculares com estados nD . O capítulo 3 trata da montagem experimental e dos procedimentos utilizados no experimento, como o funcionamento da armadilha magneto óptica, do sistema de produção de átomos de Rydberg bem como sua detecção por pulso de ionização seletiva, o sistema de aquisição de

dados, determinação do campo elétrico residual da armadilha e a seqüência temporal do experimento também são abordados neste capítulo.

Os resultados obtidos do experimento do processo $nP_{3/2} + nP_{3/2} \rightarrow nS_{1/2} + (n + 1)S_{1/2}$ como: posições de ressonâncias, efeito da radiação de corpo negro, processos de dois corpos e evolução temporal bem como a discussão dos dados, são apresentados no capítulo 4. As conclusões e as perspectivas para futuros experimentos são deixadas ao capítulo 5.

2 REVISÃO DA LITERATURA

Neste capítulo apresentamos uma revisão da literatura relacionada aos últimos experimentos realizados em nosso grupo e que trouxeram significativos avanços na compreensão dos processos de interação atômica entre átomos de Rydberg em armadilhas magneto-ópticas. O primeiro experimento abordado é o processo de transferência de população $nS + nS \rightarrow nP + (n - 1)P$, tal processo mostrou-se sensível a efeitos de campo elétrico ac e de interações de mais altas ordens entre as diferentes curvas de potenciais moleculares tal como interação dipolo-dipolo, dipolo-quadrupolo e quadrupolo-quadrupolo. Isto leva a uma mistura entre os estados em distâncias interatômicas muito pequenas. Abordaremos o modelo teórico do processo bem como sua excelente concordância com os dados experimentais. O segundo experimento trata dos efeitos do campo elétrico dc e das interações de mais altas ordens sobre os cruzamentos entre os potenciais moleculares a curtas distâncias (42). O processo de interação é dado por $nD + nD \rightarrow (n + 2)P + (n - 2)F$, para explicá-lo apresentamos um modelo semi-clássico baseado no processo de transição diabático de Landau-Zener nos cruzamentos a curtas distâncias, mostraremos a ação radical do campo elétrico dc e dos graus de interação atômica nas curvas de potenciais. Apresentamos um método para separar a contribuição da radiação de corpo negro através de um modelo de taxas e por último discutimos a evolução temporal da transferência de população, bem como comparações com resultados experimentais.

2.1 Efeito Stark ac na excitação de pares atômicos de Rydberg

Um recente trabalho de nosso grupo (8) apresentou importantes descobertas quanto ao efeito de campo elétrico ac na transferência de populações, enquanto o efeito Stark dc não se mostrou importante no processo. Consideramos também contribuições de interação dipolo-dipolo, quadrupolo-dipolo e mais altas ordens na descrição dos potenciais moleculares em transferências de populações na excitação de estados de Rydberg ultra-frios na armadilha magneto óptica. O trabalho foi realizado com estados nS com detecção do estado nP , o processo pode ser descrito como $nS + nS \rightarrow nP + (n - 1)P$. O experimento consiste na excitação de estados nS e subsequente detecção por campo seletivo de ionização após um intervalo de tempo Δt das populações finais em nS e nP .

A figura 2.1 mostra um sinal de elétrons obtido com pulso de ionização seletiva para excitação do estado $32S_{1/2}$ para um tempo de detecção de 100 ns. Podemos observar uma pequena população nos estados $32P_{3/2}$ e $31P_{3/2}$ o que naturalmente poderia ser relacionado a colisões binárias (7, 10) entre 2 átomos no estado $32S$ sob ação de um potencial atrativo. Porém, o trabalho de Singer e colaboradores (40) mostrou que esses potenciais entre dois átomos de Rydberg no estado nS são repulsivos e o modelo de colisão deve a princípio ser descartado neste processo.

A ação de campo elétrico estático aplicado na amostra, não apresentou mudanças significativas em relação a razão entre as populações $N_{32P_{3/2}}/N_{32S_{1/2}}$ como podemos observar no *inset* da figura 2.1 no intervalo entre 0 e 5 V/cm. Efeitos semelhantes foram observados no trabalho de Amthor e colaboradores(43) no estudo de ionização Penning com átomos de Rb, contudo os autores consideram a interação da radiação de corpo negro em tempos muito longos $> 10\mu s$ provocando uma mudança do potencial repulsivo para um atrativo; nossos experimentos ocorrem em tempos muito curtos para considerar ação do campo de radiação térmica.

Figura 2.1 – Sinal de elétrons resolvido no tempo resultado da detecção por campo de ionização seletiva para a excitação do estado $32S$, para um tempo de 100ns . O inset mostra a razão entre $N_{32P_{3/2}}$ e $N_{32S_{1/2}}$ em função do campo elétrico estático. A transferência de população de $N_{32S_{1/2}}$ para $N_{32P_{3/2}}$ é de $\sim 2.8\%$.

Os resultados não podem ser interpretados como ação do processo de detecção já que nesse tipo de processo deve haver um *avoid crossing* entre os potenciais (13). O *avoid crossing* ou cruzamento proibido ocorre quando há o cruzamento entre níveis de energia de pares atômicos. As interações dipolares quebram esta degenerescência originando um ponto de sobreposição de estados. A probabilidade de transição de um estado a outro é descrita pela teoria de Landau-Zener para transições diabáticas (44). Este tipo de processo contribui muito pouco já que a probabilidade de transição cai exponencialmente com a diferença de energia entre os estados, neste caso a diferença de energia entre os estados é muito grande da ordem de 2 cm^{-1} . Contudo, a dependência da população $32P_{3/2}$ com relação a densidade de $32S_{1/2}$ é quadrática como mostra o ajuste com $\delta = 2.0 \pm 0.1$ visto na figura 2.2 para $29 \leq n \leq 37$. O *inset* da figura exhibe os dados especificamente para excitação do estado $32S$, mostrando que a interação se comporta como um processo de dois corpos.

Para compreendermos os fenômenos que levam a esses processos, devemos considerar uma série de interações. A primeira delas é a inclusão da influência das interações elétricas de ordem mais altas entre os estados, como interação dipolo-dipolo, dipolo-quadrupolo e quadrupolo-quadrupolo. As curvas de potenciais moleculares foram calculadas ao redor do estado $nS_{1/2} + nS_{1/2}$ em função da distância interatômica R , bem como efeito Stark dc.

O principal resultado dessa adição de fatores de interação é uma mistura entre as funções de onda dos pares moleculares levando ao aparecimento de uma projeção do estado $|nS_{1/2} + nS_{1/2}\rangle$ em $|nP_{3/2} + (n-1)P_{3/2}\rangle$. Mostramos as curvas ao redor do estado $32S + 32S$ com projeção de momento angular $M = 1$ na direção do eixo de separação entre os átomos e campo elétrico estático $\epsilon_b = 500mV$ na figura 2.3.a.

Figura 2.2 – Comportamento quadrático da população $N_{nP_{3/2}}$ em função da densidade de $\rho_{nS_{1/2}}$ os pontos são dados experimentais e a linha é o ajuste com ρ_{n32S}^δ . O inset mostra o comportamento do estado $32P_{3/2}$ em função da densidade de $32S_{1/2}$.

A mistura entre os estados é dada por $C(R) = |\langle 32S + 32S | 32P + 31P \rangle|$ e é mostrada na fig. 2.3.b, podemos ver que a mistura entre os estados é maior para curtas distâncias e tende a zero para distâncias maiores que $1.8\mu m$. O segundo ponto importante na interpretação dos dados é a interação do laser de excitação pela ação do efeito Stark ac, consideramos um sistema de três níveis dados por: $5P_{3/2} + 5P_{3/2}$, $5P_{3/2} + 32S$ e $32P_{3/2} + 31P_{3/2}$. O efeito Stark ac levanta a degenerescência do estado $5P_{3/2} + 32S$ em múltiplas ressonâncias, esse efeito faz com que o segundo fóton seja ressonante com o estado $32P_{3/2} + 31P_{3/2}$ levando ao acoplamento entre os estados.

Figura 2.3 – (a) Curvas de potenciais moleculares para estados ao redor de $32S + 32S$ resultado da diagonalização em função da distância interatômica R considerando efeito Stark dc, interação dipolo-dipolo, dipolo-quadrupolo, quadrupolo-quadrupolo, para $M=1$, $\epsilon_b = 500\text{mV}$. (b) Projeção da mistura entre os estados, $C(R) = |\langle 32S + 32S | 32P + 31P \rangle|$.

Os parâmetros importantes do modelo são: i) intensidade do laser de excitação, ii) a frequência de Rabi para primeira transição $\Omega_1(t) = \mu_1 \epsilon_L / 2\hbar$; com $\mu_1 = \langle 5P_{3/2} | r | 32S_{1/2} \rangle$, a segunda transição $5P_{3/2} + 32S_{1/2} \rightarrow 32P_{3/2} + 31P_{3/2}$ com $\Omega_2 = \mu_2 \epsilon_L / 2\hbar$, com $\mu_2 = C(R)\mu_1$, iii) as larguras de linhas das transições e o detuning do laser.

As equações são resolvidas numericamente e a integração é realizada sobre as distâncias R onde $C(R)$ é válido, o intervalo de distâncias considerado é de $0.55 \mu m$ para o ponto interno do potencial, para distâncias menores o laser de excitação sai da condição de ressonância, e $1.8 \mu m$ para o limite externo onde a ordem de grandeza das interações multipolares é menor do que a energia cinética dos átomos. Nestas condições a razão de excitação direta é de aproximadamente 3.9 % em excelente acordo com os resultados experimentais.

É importante notar que a largura de banda do laser de excitação $\Delta\nu$ é muito menor do que a separação energética entre os potenciais $nS + nS$ e $nP + (n-1)P$. A princípio os

dados experimentais indicam um sistema de colisão com troca de potenciais, porém, o potencial alvo $nS + nS$ é repulsivo. As interações de mais altas ordens entre os estados vizinhos levam a uma mistura entre os estados e que o efeito ac do laser de excitação levanta o nível de energia do segundo estado levando ao efeito Autler Towner de excitação direta num sistema de três níveis.

O comportamento quadrático de $N_{nP_{3/2}}$ em relação a densidade de $nS_{1/2}$ também está de acordo com o modelo proposto, já que a densidade $\rho_{32S_{1/2}}$ depende linearmente da população do estado fundamental $5P_{3/2}$. A população de $nP_{3/2}$ é proporcional ao quadrado da população de $5P_{3/2}$, portanto, $N_{nP_{3/2}} \propto \rho_{nS_{1/2}}^2$ está em grande concordância com o ajuste realizado com os dados experimentais da figura 1.2.

2.2 Efeito Stark dc na excitação de pares atômicos de Rydberg

Trataremos nesta seção do trabalho mais recente do grupo, mais detalhes sobre o experimento podem ser encontrados no trabalho de Jader(41), em que excitamos átomos em estados de Rydberg nD e detectamos transferência de população para o estado $(n + 2)P$ no intervalo $29 \leq n \leq 41$. Analisaremos a dependência com relação ao campo elétrico estático e com o número quântico principal n , podemos escrever esse processo como:

$$nD + nD \rightarrow (n + 2)P + (n - 2)F \quad (2.1)$$

Em contraste com o experimento anterior, em que a separação energética assintótica entre os estados $nS + nS$ e $nP + (n - 1)P$ era da ordem de 2 cm^{-1} , a diferença de energia entre os estados $nD + nD$ e $(n + 2)P + (n - 2)F$ é pequena, da ordem de 0.03 cm^{-1} . Ou seja, da mesma ordem de grandeza da largura de linha do laser de excitação.

A figura 2.4 mostra o sinal de elétrons para excitação do estado $37D$ com tempo de 100 ns entre excitação e detecção, esta população é de 3 a 10 vezes maior em relação ao

processo de excitação direta do laser de excitação pelo efeito Stark ac descrito na sessão anterior no processo com estados nS de Rydberg.

Figura 2.4 – Sinal de elétrons, com tempo entre excitação e detecção de 100 ns para o estado com $n=37$, a transferência de população nesta escala de tempo é de aproximadamente 10 %.

A dependência da população dos estados produtos $N_{(n+2)P_{3/2}}$ com relação a densidade de átomos no estado inicial ρ_{nD} é quadrática, como podemos observar na figura 2.5 para o estado $n=37$. Graficando a população do estado 39P, N_{39P} , em função da densidade de 37 D, ρ_{37D}^δ , realizamos o ajuste da curva com a expressão anterior e obtemos $\delta = 1.9 \pm 0.1$, o processo de formação de 39P é claramente atribuído a interação de 2 corpos, onde dois átomos no estado nD interagem trocando de potencial e ganho de energia cinética. Os dados da figura 2.5 foram normalizados em ambos os eixos para melhor visualização do comportamento.

Figura 2.5 – População no estado 39P, N_{39P} , em função da densidade do estado inicial 37D, ρ_{37D} , podemos observar a dependência quadrática entre os estados, um ajuste realizado com ρ_{37D}^δ , mostra que $\delta = 1.9 \pm 0.1$.

Para interpretar os dados devemos levar em conta a interação com campo elétrico estático, a estrutura fina dos estados e as diversas interações multipolares que alteram a região interna dos potenciais levando ao surgimento de inúmeros avoid-crossings. Cada cruzamento entre os potenciais próximos a curva de potencial molecular de $nD + nD$ pode levar a transferência de população para outros estados. Foi considerado um modelo semi-clássico de transição diabática de Landau-Zener, no qual temos que a excitação de potenciais moleculares a curto alcance leva a transferência de populações.

Em primeiro lugar uma análise das curvas de potenciais é realizada, as figuras 2.6.a e 2.6.b mostram as curvas de potenciais próximas ao estado molecular $37D + 37D$ com projeção de momento angular $M = 0$ e campo elétrico estático $\epsilon = 500 \text{ mV/cm}$ e $\epsilon = 2 \text{ V/cm}$ respectivamente.

A contribuição mais importante para a mistura entre os potenciais e a formação dos avoid-crossings é a contribuição da interação dipolo-dipolo. Como exemplo, para $R \sim 2 \mu\text{m}$ e $\epsilon = 500 \text{ mV/cm}$ a contribuição de dipolo-quadrupolo é de $\sim 5\%$ comparada a anterior, e de

0.01% para a contribuição de quadrupolo-quadrupolo. A maior influência é na forma dos potenciais na região de cruzamento. Mostramos uma região do cruzamento dos potenciais a curto alcance na figura 2.7, podemos observar que a curva onde a contribuição de quadrupolo é desprezada perde um importante ponto de avoid-crossing de transição diabática.

Figura 2.6 – (a) Curvas de potenciais moleculares com interações multipolares próximos ao estado $37D + 37D$, com campo elétrico estático $\epsilon = 500 \text{ mV/cm}$, $M=0$, (b) $\epsilon = 2 \text{ V/cm}$, o efeito Stark altera a forma e os cruzamentos dos potenciais.

Figura 2.7 – Região de avoid-crossing com estado $37D + 37D$, (a) com contribuição quadrupolar, aparecimento de um avoid-crossing, (b) apenas contribuição dipolar, perda do avoid-crossing.

Podemos definir uma constante K relacionada a taxa do processo de dois corpos eq. 2.2, onde V é o volume de excitação do laser e ρ é obtido do experimento para cada número quântico principal n e campo elétrico ϵ .

$$\frac{dN_{(n+2)P}}{dt} = K \int \rho_{nD}^2 dV \quad (2.2)$$

A figura 2.8 mostra os dados experimentais e teóricos calculados em função de n para dois valores de campos elétricos $\epsilon = 500 \text{ mV/cm}$ e 2 V/cm para tempo entre excitação e detecção de 100 ns . Podemos observar um máximo para $n = 37$, isso ocorre devido ao efeito

Stark que faz com existam cruzamentos de energia entre os estado $37D + 37D$ e estados $39P + 35l$, com $l \geq 2$, figura 2.8, o modelo concorda muito bem com os dados experimentais.

Figura 2.8– Comparação entre os dados experimentais e a teoria para a taxa de formação pelo processo de dois corpos, círculo claros corresponde aos dados com campo elétrico de 500 mV/cm e círculo escuros ao campo elétrico de 2 V/cm.

A figura 2.9 revela a influencia do campo elétrico estático na região interna das curvas de potenciais próximos ao estado $37D + 37D$, com um claro aumento dos pontos de cruzamentos com o aumento do campo elétrico, cada cruzamento contribui para transferência de população. O método pode ser descrito da seguinte maneira: i) a transferência de população do par $nD + nD$ para o estado $(n + 2)P$ pode ser calculado semiclassicamente utilizando a aproximação de Landau-Zener, ii) desconsideramos a transferência como resultado de colisões entre átomos livres, já que nas escalas de tempo do experimento podemos considerar o sistema estático, iii) para tempos da ordem de nanossegundos a radiação de corpo negro não contribui, porém para tempos maiores de até $8 \mu s$ podemos extrair essa contribuição utilizando um modelo de taxas, iv) as curvas de potenciais apresentam inúmeros avoid-crossing para certas distâncias internucleares, pares que forem excitados nestas distâncias podem sofrer uma transição diabática e mudar de estado.

Figura 2.9 – Mapa Stark do estado $37D + 37D$ e estados próximos, a figura mostra o cruzamento entre os estados, e a linha contínua é a população de $39P$ em função do campo elétrico.

Portanto deve ocorrer excitação do potencial molecular entre átomos que estiverem num intervalo de distâncias que caracterizam o potencial molecular, podemos chamar o limite mínimo como R_{min} e a distância máxima R_{max} , a probabilidade de se encontrar um vizinho neste intervalo de distâncias é dado por eq. 2.3, onde ρ é a densidade de átomos no estado fundamental confinados na armadilha.

$$P_n = \int_{R_{min}}^{R_{max}} 4\pi\rho R^2 e^{-4\pi R^3 \rho/3} dR \quad (2.3)$$

Para obter o número de átomos no estado $(n+2)P$ transferidos pelo processo de transição, podemos escrever eq. 2.4, onde $N_{ef} = \rho_{ef}V$ é o número de átomos no estado fundamental no volume de excitação V , P_n é a probabilidade de encontrar o vizinho mais próximo nas distâncias de excitação ao estado molecular, $P_{tran}^{(i)}$ é a probabilidade de transição diabática calculada em cada cruzamento entre os potenciais.

$$N_{(n+2)P} = \sum_i^{N_{crossings}} \frac{P_{tran}^{(i)} P_n N_{ef}}{16} \quad (2.4)$$

A radiação de corpo negro tem grande influencia na evolução temporal dos estados, já que com o aumento do número quântico principal, a separação energética entre os estados diminui sendo proporcional a n^{-3} . Utilizamos um modelo de taxas para separar esta contribuição de nossos dados, o método é abordado em detalhes no capítulo 4, para este experimento consideramos transições entre 18 estados vizinhos ao estado nD , incluindo transições para estados P 's e F 's, desconsideramos maiores l 's, pois a transição para estes estados é muito pequena. A figura 2.10 mostra a evolução temporal do estado $31P$, a curva pontilhada é devido à subtração da contribuição de corpo negro, o estado N_{up} são dados experimentais da população de estados energeticamente acima de $29D$ e $27F$, e são populados apenas pela radiação térmica de fundo e servem como comparação com o modelo teórico mostrando a validade do método, a transferência de população devido a este processo é de $\sim 15\%$ com tempo de $8\mu s$.

Figura 2.10 – Evolução temporal do estado $31P$ com excitação do estado inicial $29D$ com $\epsilon = 0.5 V/cm$, a curva pontilhada mostra a filtragem dos dados da contribuição devido à radiação de corpo negro, a população N_{up} serve como parâmetro de comparação com o modelo teórico, o inset da figura descreve qualitativamente a evolução temporal dos estados atômicos.

Podemos observar dos dados uma evolução linear dos estados $(n + 2)P$ devido as transições diabáticas do modelo. As taxas de evolução temporal se modificam com o número quântico n e o campo elétrico aplicado ϵ , as taxas de crescimento teóricas são obtidas calculando-se os elementos de matriz de acoplamento entre os estados nos pontos de cruzamentos. Usando a regra de ouro para o decaimento do estado $nD + nD$ para estes estados se obtém as taxas, a figura 2.11 mostra as taxas experimentais e teóricas para campo elétrico de 500mV/cm e de 2 V/cm . A concordância entre os dados teóricos e a teoria é consistente com nossa interpretação do processo.

Figura 2.11 – Taxa de crescimento das populações de nP em função de n , os pontos experimentais refletem a inclinação da evolução temporal do estado, já subtraídos a contribuição de corpo negro.

Podemos também interpretar o experimento de evolução temporal como a excitação impulsiva dos pares nD num estado não estacionário e subsequente evolução temporal. Neste caso o laser excita um pacote de onda que possui um caráter de dois átomos nD , o chamado estado de ordem “zero”, com o passar do tempo o sistema evolui sob influência das interações multipolares átomo-átomo. O estado $nD + nD$ se propaga no tempo e o estado $(n + 2)P$ aparece numa escala de tempo inversamente proporcional a taxa de transição diabática do sistema, o *inset* da figura 2.10 mostra o conceito.

A transferência de população devido a transição diabática pode então ser adicionada a outros processos de decaimento como ionização Penning, decaimento de estados moleculares pela ação da radiação de corpo negro, colisões com transferência de energia e efeitos de muitos corpos. Mostramos que o efeito do campo elétrico tem um importante papel na manipulação do processo de transferência, que possui também forte dependência com o número quântico principal n . Os dados experimentais concordam muito bem com a teoria, que se utiliza de primeiros princípios para descrever o comportamento dos estados e suas interações.

3 MONTAGEM EXPERIMENTAL

A armadilha magneto óptica (AMO) é de fundamental importância para nosso experimento e seu funcionamento tem sido estudado e melhorado desde seu desenvolvimento por Raab e Pritchard (6). Os detalhes da armadilha constam num grande número de trabalhos (7-13, 41, 45-46). Desenvolveremos neste capítulo uma rápida descrição da montagem experimental e de seu funcionamento, do sistema de produção de átomos de Rydberg com a utilização do laser sintonizável de corante, do sistema de detecção por pulso de ionização seletiva, do sistema de aplicação de campo elétrico dc, da aquisição dos dados bem como das últimas melhorias implementadas.

3.1 Armadilha magneto óptica (AMO)

A tecnologia de aprisionamento atômico tem como ponto fundamental a interação da radiação com o átomo (4-5), um elevado número de fótons providos de uma fonte coerente (Laser) exerce uma força sobre um grupo de átomos num fenômeno conhecido como pressão de radiação. Para que o processo ocorra, os fótons devem possuir frequências próximas as frequências de transições atômicas, nesse processo os átomos absorvem um quanta de energia e logo o emitem em direções aleatórias.

A utilização de gradiente de campo magnético possibilita a absorção de fótons seletivamente de apenas um dos feixes contrapropagantes. O processo envolve a regra de seleção da absorção de acordo com a polarização dos feixes incidentes baseado no efeito Zeeman. Para compreender melhor o efeito do campo magnético no confinamento, vamos tomar um exemplo simples; considere um sistema hipotético de dois níveis, um elétron no estado $|n = 1, l = 0, m_l = 0\rangle = |1,0,0\rangle$ pode realizar uma transição para o estado $|2,1, m_p\rangle$ obedecendo as regras de seleção para transição dipolar $\Delta l = \pm 1$ e $\Delta m = 0, \pm 1$, esse sistema, porém, absorve fótons com diferentes polarizações se a transição é $|1,0,0\rangle \rightarrow |2,1,1\rangle$ o fóton absorvido tem polarização σ^+ , se for $|1,0,0\rangle \rightarrow |2,1, -1\rangle$ a polarização é σ^- .

O nível de energia do estado $|2,1,m_p\rangle$ é triplamente degenerado em m_p , a interação com o campo magnético $\vec{B}$ quebra essa simetria e o sistema passa a ser não degenerado. Como exemplo vamos tomar o campo magnético aplicado na direção $\hat{z}$ e que varia linearmente com a posição (campo não homogêneo) $\vec{B} = bz\hat{z}$. A variação de energia desse nível é descrito pelo efeito Zeeman e pode ser apresentado como $\Delta E_{|2,1,m_p\rangle} = bm_p\mu_B z$ em que μ_B é o magnéton de Bohr. A figura 3.1 mostra a quebra da degenerescência pela ação de um campo magnético uniforme B para o estado 2P, e as polarizações relacionadas a cada transição (47).

Figura 3.1 – Quebra da degenerescência pela aplicação de campo magnético estático (efeito Zeeman), σ^+ e σ^- são polarizações dos fótons absorvidos ou emitidos na transição de $m_s = 0$ para $m_p = 1$ e -1 respectivamente.

Considere dois feixes de luz coerente contrapropagantes com polarizações trocadas onde o feixe com polarização σ^- esta na direção contraria ao eixo z, a frequência do laser é sintonizada abaixo da frequência de transição $\Delta\omega$, átomos em movimento na direção positiva do eixo z interagem mais fortemente com o feixe de polarização σ^- resultando numa força contraria ao seu movimento, se o átomo passa a percorrer o sentido dos z negativos o efeito é semelhante com o feixe de polarização σ^+ . Na posição z_a da figura 3.1 o átomo interage mais

fortemente com o feixe de polarização σ^- resultando numa força restauradora que mantém o átomo confinado no centro da armadilha.

A generalização para as condições do laboratório em três dimensões é imediata, utilizamos três feixes de lasers contrapropagantes que se cruzam ortogonalmente e trocam de polarização ao passar por uma lamina $\lambda/4$, o sistema é mostrado na figura 3.2.

Figura 3.2 – Esquema da disposição das bobinas de campo magnético na configuração anti-helmholtz, e feixes de lasers nas polarizações das transições por regra de dipolo.

Para gerar o gradiente de campo magnético utilizamos duas bobinas na configuração anti-helmholtz, que produzem um gradiente de $\sim 10 \text{ Gauss/cm}$. O laser utilizado no aprisionamento é um laser de diodo da Tóptica modelo DL100 com comprimento de onda de 780.24 nm e potência máxima de 150 mW . Parte do feixe passa por um sistema de absorção saturada com célula de Rubídio para gerar o sinal de travamento do laser na frequência de aprisionamento dado pela estrutura de níveis hiperfinos do ^{85}Rb na transição $|5S_{1/2}, F = 2\rangle \rightarrow |5P_{3/2}, F' = 4\rangle$. A figura 3.3 apresenta um esquema da montagem experimental do sistema de absorção e do conjunto óptico do sistema de aprisionamento.

Figura 3.3 – Esquema da montagem experimental, da configuração de absorção saturada e sistema de aprisionamento.

A frequência de aprisionamento possui um *detuning* para o vermelho dessa transição de $\Delta\omega = -5\text{MHz}$. O laser de aprisionamento excita com baixa probabilidade parte dos átomos ao estado $|5P_{3/2}, F' = 3\rangle$, este estado decai para os níveis $|5S_{1/2}, F = 2\rangle$ e $|5S_{1/2}, F = 3\rangle$. Uma vez, que os átomos estão no estado $F = 2$, estes param de interagir com o laser de

resfriamento. Para evitar isso, utilizamos um modulador eletro-óptico que gera a chamada frequência de rebombeio e desloca a frequência do laser de aprisionamento em 3.036 GHz para o azul. O diagrama da figura 3.4 esclarece a última construção. Por fim o feixe é acoplado a fibras ópticas e levado a câmara. A potência de saída de cada fibra nas três direções é de aproximadamente 8 mW .

Figura 3.4 – Diagrama do processo de confinamento atômico, com níveis hiperfinos do Rb^{85} .

Nossa fonte de átomos é uma lâmina de sal de Rubídio, na qual aplicamos uma corrente elétrica de 3.5 A e por processo de redução o Rubídio atômico é liberado na câmara que está com pressão de fundo de $\sim 10^{-10}\text{ Torr}$. Nessas condições o número de átomos aprisionados na armadilha é de $\sim 2.5 \times 10^6$ com densidade média da ordem de $2 \times 10^{10}\text{ átomos/cm}^{-3}$ ocupando um volume quase esférico. Os átomos possuem velocidades médias da ordem de 20 cm/s correspondendo a temperaturas por volta de $300\mu\text{K}$. As figuras a seguir mostram a imagem da câmara e da armadilha carregada com átomos de Rubídio 85.

Figura 3.5 – Foto da câmara de aprisionamento e bobinas anti-helmholtz (a) e da (AMO) com átomos de Rubídio 85 utilizando câmera CCD (b).

3.2 Excitação e detecção dos estados de Rydberg

Os átomos são levados ao estado de Rydberg por um processo de dois fótons, ou seja, parte dos átomos confinados na armadilha estão no estado $5P_{3/2}$ pela prévia excitação de um fóton do laser de aprisionamento de comprimento de onda 780 nm . O segundo fóton leva o último estado ao de Rydberg $|nlm_j\rangle$ seguindo as regras de transição dipolar. O laser utilizado para esta última excitação é um laser de corante Jaguar Continuum que é bombeado pelo terceiro harmônico de um laser Nd:Yag pulsado, possui largura de linha de 0.05 cm^{-1} e cada pulso tem duração da ordem de 4 ns e potência de pico 250 MW . O corante utilizado é o Exciton Coumarin 480 diluído em metanol segundo as especificações do fabricante, e nos permite atingir regiões do espectro de 470 a 484 nm . Possibilitando alcançar estados de Rydberg com máximo número quântico principal n de 45, e limite inferior, n igual a 30. O

limite inferior é devido á máxima alta tensão disponível no laboratório para ionização de estados com número quânticos menores. O pulso do laser de excitação possui taxa de repetição de 20 Hz.

O método utilizado para a detecção dos estados de Rydberg é a de ionização por campo seletivo utilizado em vários experimentos de nosso grupo (7-10). O procedimento se baseia na utilização de uma importante propriedade dos estados de Rydberg, a baixa energia de ionização. Com estados fracamente ligados, os átomos são facilmente ionizados pela aplicação de um campo elétrico. Neste caso ao aplicarmos uma rampa de campo elétrico, conseguimos observar a ordem de ionização dos estados, já que estados com menor energia de ligação são ionizados primeiro, e rapidamente identificá-los.

O campo elétrico de ionização é bem conhecido na literatura e pode ser escrito em função do número quântico efetivo como mostrado na eq. 3.1. Uma discussão mais detalhada pode ser encontrada em(2), mas como exemplo podemos informar que o campo para ionização do estado $n = 34$ é de aproximadamente 280 V/cm.

$$E = \frac{1}{16n_s^4} \quad (3.1)$$

Para gerar o pulso de ionização utilizamos um gerador de pulso de alta tensão AVTECH modelo AVRH-3-OS-PN que atinge um máximo de 3KV com tempo de subida de $2.5 \mu s$.

Estão localizadas no interior da nossa câmara duas grades metálicas, ambas equidistante do centro da armadilha, com dimensões de 95x75 mm, transmissividade de 95%, distância de separação de 15 mm e possuem basicamente duas finalidades: i) aplicação de campo elétrico estático na amostra para o estudo da ação de efeito Stark e ii) aplicação do pulso de ionização para detecção. Uma foto do interior da armadilha com as grades de campo elétrico são mostradas na figura 3.6.

Figura 3.6 – Interior da câmara de aprisionamento, com grades paralelas para aplicação de campo elétrico estático e pulso de ionização.

Após a ionização os elétrons são acelerados até um CEM (Channel Electron Multiplier) que amplifica o sinal de elétrons por efeito avalanche. O campo elétrico utilizado no detector de elétrons é de 2KV proporcionando um sinal nítido de elétrons.

O campo elétrico dc é aplicado em uma das grades de ionização enquanto a grade oposta permanece aterrada. A tensão é controlada por um software Labview com placa de aquisição e geração de sinais da National modelo PCI6229 com definição de 0.001 V e voltagem máxima de 10 Volts. Para atingir campos elétricos maiores o sinal foi amplificado com o uso de um amplificador operacional (modelo TL074CN) com um máximo de saturação de 15 volts. O amplificador foi calibrado para que trabalhasse apenas na região linear de amplificação; possibilitando observar as ressonâncias para $n = 32$ com $E \cong 12V/cm$. O campo elétrico residual entre as placas foi medido para esta montagem experimental e a aplicação de $E \cong -1.9 V/cm$ foi necessário para anular o campo elétrico residual entre as placas, e evitar possíveis interações com o campo elétrico de fundo do sistema. O pulso de ionização possui tempo de subida de aproximadamente $2.6 \mu s$, um perfil do pulso de alta tensão é mostrado na figura 3.7 calibrada para ionização do estado $34S_{1/2}$.

Figura 3.7 – Perfil do sinal de alta tensão, calibrado para ionização do estado $34S_{1/2}$; o sinal possui tempo de subida de $\cong 2.6\mu s$, aplicado $1.1\mu s$ após a excitação da amostra para o estado $34P_{3/2}$.

A identificação das populações nos respectivos estados de Rydberg é obtida de acordo com o campo elétrico de ionização aplicado. A detecção do estado $nS_{1/2}$ é mais facilmente identificada no sinal de elétrons uma vez que seu campo de ionização é aproximadamente 12 % maior que o campo de ionização do estado alvo $nP_{3/2}$, em contraste com o estado $(n + 1)S_{1/2}$ que tem limite de ionização muito próximo do anterior com diferença da ordem de 0.3 % e não pôde ser resolvido pelo sinal de elétrons. A figura 3.8 mostra um típico sinal de elétrons do processo com $n = 34$.

Figura 3.8 – Perfil do sinal de elétrons para ionização dos estados $|35S_{1/2}\rangle$, $|34S_{1/2}\rangle$ e $|34P_{3/2}\rangle$. O tempo entre excitação e o pulso de ionização é de $1.1\mu s$. Excitação com campo elétrico dc de $E = 6.32 \pm 0.03 \text{ V/cm}$.

Na figura anterior o estado alvo da excitação é o $34P$, o sinal de maior amplitude é a população em $34P$ ionizado num campo de aproximadamente 250 V/cm logo após o estado produto $34S$ é ionizado a $\cong 288 \text{ V/cm}$. O estado $35S$ possui campo de ionização muito próximo de $34P$ e não pode ser resolvido de forma eficiente pelo pulso de ionização. Sabemos que para tempos maiores entre excitação e detecção, a transição para estados de maiores energias ou de menores energias de ligação ocorre devido a radiação de corpo negro. Nesse caso, os estados de maiores energias são ionizados primeiro, na figura 3.9 mostramos um sinal de elétrons da excitação do estado $33P$ com tempo Δt de $8 \mu\text{s}$. Chamaremos esse grupo de estados ionizados de nN_{ups} como mostra a figura.

Figura 3.9 – Perfil do sinal de elétrons para ionização dos estados $|34S_{1/2}\rangle$, $|33S_{1/2}\rangle$, $|33P_{3/2}\rangle$ e $|33N_{up}\rangle$. O tempo entre excitação e o pulso de ionização é de $8.1 \mu\text{s}$. Excitação com campo elétrico dc de $E = 8.94 \pm 0.08 \text{ V/cm}$.

3.3 Aquisição dos dados e seqüência temporal

O sinal de elétrons depois de amplificado passa por um sistema integrador boxcar. Utilizamos para os experimentos um máximo de três janelas de integração do boxcar, um para cada estado ionizado (nS, nP, N_{up}), como resultado temos um sinal proporcional a população de cada estado e finalmente o sinal é salvo no computador para análise.

Todo o sistema é sincronizado pelo sinal de um fotodetector que mede o pulso do laser de excitação, e a seqüência temporal do experimento é controlada por um programa Labview ligada a um gerador de Delay digital modelo DG535 por uma placa GPIB da National.

A seqüência temporal do experimento de modo geral é feita da seguinte maneira, os átomos são excitado ao estado alvo de Rydberg, sob a ação ou não de campo elétrico estático. Um tempo Δt após a excitação o pulso de ionização é ligado, os estados são ionizados e seletivamente adquiridos no computador. A figura 3.10 mostra o diagrama da seqüência temporal do experimento.

Figura 3.10 – Seqüência temporal do experimento, o pulso de ionização é ligado um tempo Δt após o pulso do laser de excitação.

3.4 Campo elétrico Residual

A montagem experimental deve possuir alto controle de campo elétrico estático na amostra, de maneira a possibilitar o estudo da relação do campo elétrico na transferência de populações. O sistema é sujeito a um campo elétrico residual devido ao campo de alta tensão do detector de elétrons (CEM), que por construção esta localizado perpendicularmente as grades no interior da câmara como mostra a fig. 3.6. Para detectar tal campo residual, observamos a população no estado nP , pois devido as regras de seleção dipolar o laser de excitação só poderia excitar os estados de Rydberg nS ou nD . Estados nP e $n(l > 2)$ apenas são excitados na presença de campo elétrico devido à quebra da regra de seleção. A figura 3.11 mostra a varredura dos estados de Rydberg em função do comprimento de onda do laser de excitação.

Figura 3.11 – Varredura dos estados de Rydberg em função do comprimento de onda do laser de excitação. O estado 36P é alcançado devido a ação de um campo elétrico residual de fundo do sistema.

Realizamos uma varredura da população do estado $36P$ em função do campo elétrico aplicado nas grades, o tempo entre excitação e detecção Δt é de $1.1 \mu s$, e obtemos o gráfico da figura 3.12. Observamos um mínimo em $-1.9 \pm 0.08 \text{ V/cm}$, dessa maneira a aplicação de -1.9 V/cm nas grades é necessária para zerar o campo elétrico residual. Lembramos que os experimentos com estados nP' s apresentados neste trabalho tem como condição inicial a aplicação de campo elétrico estático na excitação das amostras.

Figura 3.12 – População do estado $36P$ em função do campo elétrico estático, procedimento aplicado na medida do campo elétrico residual do sistema.

4 RESULTADOS E DISCUSSÕES

Apresentaremos neste capítulo os resultados e discussões sobre os experimentos realizados. Inicialmente apresentaremos o experimento que mapeia as posições em que o processo de interação $nP + nP \rightarrow nS + (n+1)S$ é ressonante em função do campo elétrico dc no intervalo $32 \leq n \leq 36$. Assim, estaremos aptos a investigar em detalhes a influência do campo elétrico no processo de transferência de populações na excitação de estados de Rydberg. Na seção 4.2 dois experimentos de evolução temporal da população em nS são discutidos, no primeiro observamos a dependência da transferência de população em função do número quântico principal e no segundo observamos o comportamento em função da variação do campo elétrico estático. Desenvolvemos um procedimento para eliminar a contribuição da radiação de corpo negro em nossos resultados. Demonstramos que o processo de interação é binário visto que sua dependência é claramente quadrática em relação à densidade de átomos de Rydberg no estado nP excitados. Também mostramos que nosso modelo de taxas para o tratamento da radiação de corpo negro está em ótima concordância com nossos dados experimentais.

4.1 Campo elétrico dc e posições de ressonâncias

O processo de interação $nP_{3/2} + nP_{3/2} \rightarrow nS_{1/2} + (n+1)S_{1/2}$, possui de acordo com a estrutura Stark destes estados, ressonâncias para certos campos elétricos dc. Ou seja, em certas posições de campo elétrico, as quais dependem do número quântico principal n , ocorre um cruzamento entre as energias assintóticas dos pares atômicos $nP_{3/2} + nP_{3/2}$ e $nS_{1/2} + (n+1)S_{1/2}$. Nesse caso, a diferença de energia ΔE eq. 4.1 entre os dois estados é nula, a esta situação chamaremos de condição de ressonância.

$$\Delta E = E_{|nP_{1/2}, nP_{3/2}\rangle} - E_{|nS_{1/2}, (n+1)S_{1/2}\rangle} \quad (4.1)$$

O estado $nP_{3/2}$ possui duas projeções de momento angular $|m_j| = 1/2$ e $3/2$. Como m_j é no efeito Stark um bom número quântico a degenerescência energética é levantada nas duas projeções e temos para cada número quântico principal n três posições de ressonâncias. Os picos ressonantes, isto é, $\Delta E = 0$ para cada combinação de projeção é mostrado na figura 4.1(a-e), onde a população produto no estado $nS_{1/2}$ é graficada em função do campo elétrico aplicado na amostra.

Figura 4.1 – Os gráficos de (a-e) se referem aos estados com número quântico fixo de 32 a 36 respectivamente e mostram a população de nS em função do campo elétrico para o processo $nP_{3/2} + nP_{3/2} \rightarrow nS_{1/2} + (n+1)S_{1/2}$, os três picos da esquerda para direita referem-se às três projeções de m_j ; $|m_j| = 1/2 + 1/2$, $|m_j| = 1/2 + 3/2$ e $|m_j| = 3/2 + 3/2$ respectivamente.

O experimento para detectar as respectivas posições de ressonância foi realizado pela excitação do estado $nP_{3/2}$ dos átomos de Rubídio aprisionados na armadilha com n no intervalo $32 \leq n \leq 36$. A observação das populações resultantes pelo sinal de ionização correspondem a um tempo entre excitação e detecção fixo de $1.1\mu s$.

Para obter as posições das ressonâncias realizamos simulações numéricas utilizando teoria de perturbação. O campo elétrico aplicado é da ordem de poucos volts por centímetro, muito menor que o campo elétrico nuclear $\approx 10^9 V/cm$ e pode ser tratado como uma pequena perturbação ao Hamiltoniano do átomo não perturbado como descrito em (16). Um exemplo da solução numérica para $n = 32$ é mostrado na figura 4.2. As três intersecções da figura estão relacionadas com as três projeções m_j discutidas no texto.

Figura 4.2 – Diagrama de energia dos pares atômicos $32P_{3/2} + 32P_{3/2}$ e $32S_{1/2} + 33S_{1/2}$ e cruzamentos com $\Delta E = 0$ para as projeções de $m_j = 3/2$, $|m_j| = 1/2 + 1/2$, $|m_j| = 1/2 + 3/2$ e $|m_j| = 3/2 + 3/2$. O zero de energia foi tomado no ponto de ressonância $|m_j| = 1/2 + 3/2$.

A solução numérica obtida é apenas aproximada, uma vez que um número finito de estados é considerado na condição inicial do processo numérico de diagonalização. Os resultados obtidos das posições de ressonância são apresentados na tabela 4.1.

Tabela 4.1 – Campo elétrico de ressonância para as três projeções de momento angular m_j obtidos das simulações para o intervalo de n 32 a 36.

Número quântico n	$ m_j = 1/2 + 1/2$	$ m_j = 1/2 + 3/2$	$ m_j = 3/2 + 3/2$
	(V/cm)	(V/cm)	(V/cm)
32	10.23	10.79	11.45
33	7.77	8.19	8.69
34	5.82	6.14	6.52
35	4.24	4.48	4.75
36	2.94	3.10	3.29

Os resultados experimentais da varredura de campo elétrico são mostrados na tabela 4.2, demonstram uma boa concordância com os campos da simulação numérica. Os dados para $n = 32$ e 33 também concordam com resultados experimentais obtidos por Lowel (37)(31). Para melhor observar a validade dos dados, comparamos a diferença entre os campos para dois picos não adjacentes e tanto a simulação $[\Delta E_{campo}^{máximo}(T)]$ como o experimento $[\Delta E_{campo}^{máximo}(E)]$ apresentam uma aproximação entre os picos com aumento de n .

Tabela 4.2 – Respectivas posições de ressonância experimentais em função do campo elétrico estático para $32 \leq n \leq 36$, para as três projeções de momento angular m_j .

n	$ m_j = 1/2 + 1/2$	$ m_j = 1/2 + 3/2$	$ m_j = 3/2 + 3/2$	$\Delta E_{campo}^{máximo}(T)$	$\Delta E_{campo}^{máximo}(E)$
	$\pm 0.08 \text{ V/cm}$	$\pm 0.08 \text{ V/cm}$	$\pm 0.08 \text{ V/cm}$	Entre picos	Entre picos
				(V/cm)	(V/cm)
32	10.58	11.22	12.00	1.22	1.42 ± 0.16
33	7.95	8.40	8.96	0.92	1.01 ± 0.16
34	5.96	6.33	6.73	0.70	0.77 ± 0.16
35	4.16	4.44	4.71	0.51	0.55 ± 0.16
36	2.49	2.63	2.83	0.35	0.34 ± 0.16

Para melhor compreender o comportamento dessas ressonâncias em função da separação energética entre elas, realizamos uma transformação do eixo das abscissas (campo elétrico - E) para energia ($MHz - \nu$). Essa transformação é possível já que existe uma relação biunívoca entre o campo elétrico estático e os níveis de energia dos estados. No intervalo de campo em que essas ressonâncias ocorrem essa relação é linear e varia apenas de acordo com o número quântico principal n . Para compreender melhor a relação entre a variação do número quântico principal no deslocamento dos pontos de ressonância, realizamos o ajuste das curvas experimentais com ajuda de funções Lorentzianas. O ajuste nos fornece importantes parâmetros do acoplamento, como as larguras de linha e separação entre picos não adjacentes. A figura 4.3 mostra a razão entre as populações no estado $35S$ e $35P$ em função da energia relativa ν em MHz .

Figura 4.3 – Posições de ressonância em função da energia relativa, a curva verde é o ajuste da curva experimental realizada com a soma de 3 funções Lorentzianas.

Podemos observar dos gráficos da figura 4.1(a-e) e da figura 4.3 que existe populações no estado nS mesmo para campo elétrico fora da região de ressonância, esse processo é semelhante ao apresentado na transferência diabática de população $nD + nD \rightarrow (n + 2)P + (n - 2)F$.

A figura 4.4 sintetiza as informações relativas as larguras de linha $\Delta\nu$ e separação de picos não adjacentes $\Delta\nu_0$ obtidos dos ajustes das curvas de ressonância para estados com número quântico de 32 a 36.

Figura 4.4 – O gráfico mostra as larguras de linha e distância entre picos não adjacentes das ressonâncias em unidade de energia (MHz) em função do número quântico principal n .

A largura de linha para $n = 32$ é de aproximadamente 7 MHz e para $n = 36$ se reduz a aproximadamente a metade 3.3 MHz . No entanto, as diferenças de energia entre picos não adjacentes são ainda mais exacerbadas, sendo a variação de $\cong 79 \text{ MHz}$ em $n = 32$ para $\cong 11 \text{ MHz}$ em $n = 36$ uma redução de 86 % da separação entre os picos, essa diminuição da separação entre as linhas esta de acordo com o comportamento observado de sobreposição dos picos de ressonância para $n=36$ mostradas na figura 4.1(e).

4.2 Evolução temporal

Realizamos dois experimentos de evolução temporal. No primeiro experimento variamos o número quântico principal n mantendo o campo elétrico na posição de ressonância relativa ao último pico das curvas mostradas na figura 4.1(a-e). No segundo experimento variamos o campo elétrico dc aplicado na amostra para um número quântico fixo de $n = 33$. Como exemplo a figura 4.5 mostra a evolução temporal da população $35S$ ao se excitar o estado $35P$, podemos observar que a excitação de estados mais energéticos N_{up} pela radiação de corpo negro é importante no experimento e precisamos eliminá-lo dos dados experimentais.

Figura 4.5 – Evolução temporal do estado $35S$ ao excitar estados $35P$. A curva relativa a excitação de estados mais energéticos N_{up} foi multiplicada por 8 para melhor observação na mesma escala.

4.2.1 Eliminação do efeito da Radiação de corpo negro

O pico rotulado como nN_{up} como pode ser visto na figura 3.9 para $n = 33$ representa a população de estados mais energéticos do que os considerados na interação $nP + nP$ e é uma boa medida da depopulação de nP pela radiação de corpo negro. As equações do modelo

são todas lineares e apresentam basicamente dois termos, uma ligada ao decaimento espontâneo a 0K para todos os estados abaixo de nP excluindo-se nesse caso os estados do modelo e um segundo termo que se refere às taxas de transições entre os estados considerados. O modelo considerado para as simulações levam em conta a transição entre 7 estados de $l = 0, 1$ e 2 todos adjacentes em energia a nP .

A condição inicial proposta para solução numérica é uma população inicial igual a 1 para o estado nP , e nula para os outros estados. A expressão 4.7 descreve a forma geral das equações.

$$\frac{dN_{nl}}{dt} = -\frac{1}{\tau} N_{nl} + \sum_{n'l'}^U [\gamma_{n'l'nl} N_{nl} - \gamma_{nl n'l'} N_{n'l'}] \quad (4.7)$$

Onde U representa o conjunto de todos os estados próximos ao estado alvo e para o qual há transições de dipolo seguindo a regra de seleção $\Delta l = \pm 1$, o resultado dessa análise são 21 equações diferenciais acopladas uma para cada estado; que podemos resolver numericamente, como produto obtemos a evolução da população do estado nN_{up} relativas ao estado inicial nP para comparação com os dados experimentais. A figura 4.6 mostra um diagrama dos estados considerados nesta simulação.

Figura 4.6 - Diagrama de estados para o modelo de transições devido a interação com o campo de radiação de corpo negro, 21 estados são considerados para $l = 0, 1$ e 2. Os estados são mostrados em ordem de energia.

A taxa de transição γ , porém, é escrita levando-se em conta o número de ocupação de fótons no campo (48), assim escrevemos as taxas de transições que são dadas pelo produto entre os coeficientes de Einstein pelo número de ocupação eq. 4.8 de fótons $\bar{n}$ (bósons) no campo de radiação para temperatura T , e ficamos com a expressão 4.9, um procedimento semelhante foi utilizado em (49)(45).

$$\bar{n} = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1} \quad (4.8)$$

$$\gamma_{nln'l'} = A_{nln'l'}(\bar{n} + \theta_{nln'l'}) \quad (4.9)$$

onde,

$$\theta_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{se } E_i > E_j \\ 0 & \text{se } E_i < E_j \end{cases} \quad (4.10)$$

Comparamos os resultados das simulações para nN_{up} com os dados experimentais de evolução temporal. Para esse experimento excitamos a amostra para o estado de Rydberg nP e após um intervalo Δt aplicamos o pulso de ionização, o sinal das populações de nP_j , $nS_{1/2}$ e nN_{up} após a passagem pelo sistema integrador boxcar são adquiridas. Deixamos o sistema evoluir de 0.1 a $10\mu s$ acima deste intervalo de tempo fenômenos de decaimento espontâneo e corpo negro tomam conta dos processos (8-9).

Os estados de $32 \leq n \leq 36$ concordaram muito bem com a simulação, a figura 4.7 mostra a comparação dos dados experimentais do estado com $n = 36$, a simulação concorda muito bem com o experimento.

As equações de taxa descrevem de forma simples o efeito da transferência de população entre os estados devido a interação com a radiação de corpo negro. Podemos então utilizar essa simulação para filtrar nossos dados e subtrair dos sinais de ionização a contribuição de corpo negro de cada estado de outras contribuições de maneira eficiente.

Figura 4.7 – Comparação dos dados experimentais para efeito de corpo negro com dados de evolução temporal no intervalo $32 \leq n \leq 36$. A simulação concorda muito bem com o experimento como exemplo $n = 36$.

Nosso modelo descreve satisfatoriamente a contribuição da radiação de corpo negro na depopulação dos estados nP como pudemos ver na comparação entre os nN_{up} 's teóricos e experimentais. Então, realizamos a simulação para cada estado n de $32 \leq n \leq 36$ no intervalo de tempo entre $0.1 \mu s$ e $10 \mu s$ e obtemos a evolução temporal da população dos estados nS , subtraímos então dos dados experimentais esta contribuição. Mostramos um exemplo no procedimento para o estado com número quântico $n = 32$ na figura 4.8, os dados originais (quadrados cheios de cor preta) e após a filtragem (quadrados vazios de cor vermelha) resultando apenas na evolução temporal devido à interação de dois corpos.

Figura 4.8 – Filtragem dos dados experimentais pela subtração da contribuição da radiação de corpo negro encontrada no modelo de taxas para o estado $32S$.

O processo colisional $nP + nP \rightarrow nS + (n + 1)S$ possui uma peculiaridade, os campos de ionização para os estados nS e $(n - 1)D$ são praticamente iguais com diferença da ordem de 0.33 %, portanto são ionizados em conjunto. Nosso sinal de nS resultado do pulso de ionização é, portanto, um híbrido da combinação de populações nS e $(n - 1)D$. O estado $(n - 1)D$ é um dos estados considerados em nosso modelo de taxas e é populado unicamente pela radiação de corpo negro, podemos então filtrar essa contribuição utilizando do mesmo procedimento mostrado na figura anterior.

4.2.2 Evolução temporal em função do número quântico principal.

Os respectivos campos elétricos de ressonância para cada estado de número quântico principal n no intervalo de 32 a 36 é mostrada na tabela 4.3 e correspondem ao último pico de cada ressonância observada.

Tabela 4.3 – Posições de campo elétrico utilizados no experimento de evolução temporal no intervalo $32 \leq n \leq 36$ correspondente ao ultimo pico de cada ressonância fig.4.1(a-e).

n	$ m_j = 3/2 + 3/2$ $\pm 0.08 \text{ V/cm}$
32	12.00
33	8.96
34	6.71
35	4.68
36	2.83

Os resultados são mostrados na figura 4.9, já subtraídos as contribuições da radiação de corpo negro. Medimos a taxa de crescimento das populações somente para a parte inicial da curva de 0.1 a 2.6 μs desprezando a região de saturação logo após esse intervalo. Podemos ver que ocorre em todos os casos a excitação direta de estados moleculares (estados nS) pelo laser, para os processos com $n = 32$ e 33 a transferência inicial é de aproximadamente 23%, e para $n = 34, 35$ e 36 de $\sim 14\%$.

Figura 4.9 – Evolução temporal para $n = 32 \leq n \leq 36$ a evolução é graficada num intervalo de tempo de 100 ns a 5 μs , e apresenta saturação em $\sim 2.6 \mu\text{s}$.

As curvas também apresentam diferentes taxas de crescimento, para cada n , o que pode ser causado pelas diferentes curvas de potenciais que variam de acordo com n alterando significativamente as probabilidades de transição. De qualquer maneira, parece haver uma diminuição da taxa de transição com o aumento do número quântico principal n neste intervalo, ocorrendo pontos de saturação para todos os números quânticos em aproximadamente $2.6 \mu s$. Graficamos na figura 4.10 as taxas de formação em função do número quântico principal e comparamos com as larguras de linha, podemos ver que as taxas possuem um comportamento semelhante ao mostrado para as larguras de linha.

Figura 4.10 – Taxa de formação (derivada da curva de evolução temporal) para tempo máximo de $2.5 \mu s$, em função do número quântico principal e larguras de linhas obtidas dos parâmetros dos ajustes com lorentzianas.

Para compreender detalhadamente o mecanismo que leva a esse processo uma análise teórica detalhada dos potenciais moleculares em curtas distâncias envolvendo interação dipolar, quadrupolar e de mais altas ordens deve ser realizada, assim como a interação do efeito Stark ac e dc. Isto está em andamento com colaboração do grupo da Universidade de Oklahoma com o professor J. Shaffer. Contudo podemos fazer uma analogia com o oscilador harmônico, onde a taxa de decaimento ξ é proporcional a largura de linha $\Delta\nu$ e para tempos muito curtos podemos aproximar $e^{-\xi t} \sim 1 - \xi t$, ou seja, ξ é análoga a taxa de

formação do estado nS neste processo. A largura de linha $\Delta\nu \propto \xi$ como mostram os comportamentos obtidos dos dados experimentais da fig. 4.10, ambas as grandezas se reduzem a metade no intervalo de n de 32 a 36, cujo efeito pode ser causado por um desacoplamento da interação com o aumento do número quântico principal.

4.2.3 Evolução temporal em função do campo elétrico dc.

Utilizamos o estado com $n = 33$ para este experimento de evolução temporal. O campo elétrico de ressonância deste estado é de $8.94 \pm 0.08 \text{ V/cm}$, como medido anteriormente. A população é observada até o tempo máximo de $5 \mu\text{s}$ e apresenta saturação também por volta de $2.6 \mu\text{s}$ em concordância com dados anteriores discutidos na seção anterior. Contudo, o que mais chama atenção nesses resultados é o comportamento das taxas de crescimento, ou de maneira análoga, a derivada das curvas para tempos menores que o de saturação para cada campo. Fica evidente que para o campo de ressonância (triângulo verde – fig.4.11) a taxa de crescimento é elevada em contraste com o campo longe da ressonância (triângulo roxo – fig.4.11).

Figura 4.11 – Evolução temporal da excitação inicial do estado $33P$ e subsequente observação do estado $33S$ para diversos campos elétricos próximos a ressonância.

As taxas de crescimento do estado $33S$ para tempos inferiores a saturação são mostrados na figura 4.12. Comparamos as taxas de crescimento e a linha de ressonância em função do campo elétrico na figura 4.13 e observamos que a concordância indica a correlação entre os processos.

Figura 4.12 – Taxa de crescimento do estado $33S$ em função do campo elétrico para um tempo máximo de $5 \mu s$. O campo de ressonância deste estado concorda com o máximo da taxa de crescimento no campo elétrico $E = 8.94 \pm 0.08 V/cm$.

Figura 4.13 – Comparação entre as posições de ressonância e taxa de crescimento das populações para $n = 33$, as derivadas são obtidas para um tempo de $2.5 \mu s$.

Podemos entender qualitativamente o processo anterior em que a taxa de formação dos estados produtos aumentam significativamente na condição de ressonância $\Delta E = 0$. Em primeiro lugar, sem perda de generalidade, consideramos as curvas assintóticas de potenciais para ambos os pares $nS + nS$ e $(n + 1)P + nP$ como sendo C_5/R^5 , onde a diferença de energia assintótica entre os potenciais é ΔE , como nosso sistema coloca os potenciais na condição de ressonância, podemos tomar $\Delta E \propto \epsilon$ ($\epsilon = \text{campo elétrico estático}$) a menos da soma de uma constante; utilizamos a probabilidade diabática de transição de Landau-Zener no avoid-crossing, $P_{dia} = e^{-2\pi\Gamma}$, em que Γ é dada pela equação 4.11.

$$\Gamma = \frac{\pi|\Delta\omega|^2}{\hbar \frac{dR}{dt} \frac{dV}{dR}} \quad (4.11)$$

Neste caso temos que a separação energética no ponto de crossing $\Delta\omega \propto \Delta E \propto \epsilon$, que a derivada do potencial em relação a distância internuclear R , pode ser escrita como $\frac{dV}{dR} \propto \frac{1}{R^6}$, consideramos também que a separação entre os potenciais é muito pequena de modo que podemos aproximar $\Delta E \cong \frac{1}{R^5} \propto \epsilon$, ou seja, $R \propto \frac{1}{\epsilon^{1/5}}$, a velocidade no ponto de crossing é proporcional a energia cinética, que tomamos sendo a diferença de energia entre os potenciais, assim temos $\frac{dR}{dt} = v \propto \Delta E^{1/2} \propto \epsilon^{1/2}$, ficamos finalmente com $\Gamma \propto \epsilon^{0.3} \propto \Delta E^{0.3}$, no limite em que a diferença de energia entre os potenciais se anula, condição de ressonância, a probabilidade de transição aumenta. Vimos no capítulo 2 que a escala de tempo de evolução temporal é inversamente proporcional a taxa de transição diabática entre os estados, neste caso, quando a condição de ressonância é alcançada através da sintonização do campo elétrico, a probabilidade de transição é máxima, e a escala de tempo da evolução temporal diminui, ou de maneira análoga, a taxa de crescimento aumenta.

4.3 Transferência de população em função da densidade atômica

A transferência de população na interação entre átomos de Rydberg se comporta, como observado em experimentos anteriores (7-10), claramente como um processo de dois corpos, visto em trabalhos com estados $nS + nS$ (8), $nP + nP$ (7), $nD + nD$ (50). Nestes experimentos de nosso grupo um átomo no estado $|nl\rangle$ interage com outro e ambos trocam de estado com mudança de potencial.

Esta transferência de estado pode ser devido a interação dipolar, quadrupolar ou ordens maiores de interação elétrica ou mesmo a excitação direta pelo laser de excitação devido a efeito Stark ac e dc. De qualquer forma nas nossas densidades ($\sim 5 \times 10^9$ átomos/ cm^3), o processo pode ser descrito pela dependência quadrática da população de átomos resultantes com a densidade de átomos no estado inicial. Além disso, também temos a transferência de população devido a radiação de corpo negro, a qual é linear com a densidade atômica da amostra. Assim, a taxa de formação da população no estado nS em função da densidade atômica do estado nP pode ser escrita por:

$$\frac{d\rho_{nS}}{dt} = \gamma \rho_{nP} + \sum_i \gamma_i \rho_{n'l'} + \kappa(t) \rho_{nP}^2 \quad (4.12)$$

Onde temos que os termos lineares são devido ao decaimento espontâneo e radiação de corpo negro. Numa primeira aproximação podemos tomar $\rho_{n'l'} = \gamma_j \rho_{nP}$ e ficamos com :

$$\frac{d\rho_{nS}}{dt} = \gamma \rho_{nP} + \sum_{ij} \gamma_i \gamma_j \rho_{nP} + \kappa(t) \rho_{nP}^2 \quad (4.13)$$

Para o número de átomos no estado nS integramos a equação 4.13 para o intervalo de tempo de 0.1 a 10 μs , ficamos com:

$$N_{nS}(t) = \int_0^t \int_v dv dt (\gamma \rho_{nP} + \sum_{ij} \gamma_i \gamma_j \rho_{nP}) + \int_0^t \int_v dv dt \kappa(t) \rho_{nP}^2 \quad (4.14)$$

Da observação experimental podemos afirmar que existem duas componentes uma linear α e outra quadrática β entre o número de átomos do estado nS e a densidade atômica no estado nP , e podemos escrever a seguinte relação :

$$N_{nS}(t) = \alpha \rho_{nP}(t) + \beta \rho_{nP}^2(t) \quad (4.15)$$

observamos, então, a seguinte relação:

$$\alpha \rho_{nS}(t) = \int_0^t \int_v dv dt \left[\gamma \rho_{nP} + \sum_{ij} \gamma_i \gamma_j \rho_{nP} \right] \quad (4.16)$$

$$\beta \rho_{nP}^2(t) = \int_0^t \int_v dv dt \kappa(t) \rho_{nP}^2 \quad (4.17)$$

Para realizar essas medidas, excitamos os átomos para o estado $33P$ e variando a potência do laser de rebombeio, controlando assim a densidade de átomos no estado fundamental na armadilha. Observando o sinal de elétrons seletivamente obtendo as populações para o estado $33P$ e $33S$ com intervalos entre excitação e detecção de 100 ns , $1\text{ }\mu\text{s}$, $2\text{ }\mu\text{s}$ e $10\text{ }\mu\text{s}$.

Na figura 4.14 mostramos os resultados experimentais para o tempo de 100 ns e $10\text{ }\mu\text{s}$ para o estado excitado $33P$ sob ação de campo elétrico de ressonância $\sim 8.89\text{ V/cm}$. Também medimos a população em $\sim 9.20\text{ V/cm}$, ou seja fora da ressonância, a qual apresentou o mesmo comportamento.

Figura 4.14 – (a) – Dependência da população $33S$ em função de ρ_{33P} para tempo de 100 ns após a excitação do estado $33P$. (b) – Mesma dependência entre populações, com tempo de $10 \mu s$.

As curvas apresentadas na figura anterior mostram que para tempos curtos, a contribuição da radiação de corpo negro é desprezível. Vamos utilizar o modelo apresentado na seção 4.2.1 para descrever a contribuição do BB. Resolvemos numericamente as equações de taxa do modelo para um tempo fixo e variando a densidade do estado inicial nP , obtivemos curvas que mostram o crescimento linear do estado nS em função da densidade em nP . As simulações para $\Delta t = 3 \mu s$ e $8 \mu s$ são graficadas na figura 4.15, a inclinação das curvas corresponde a taxa com que o estado $33P$ sofre transições para $33S$ devido ao BB. E como esperado o comportamento é linear. O modelo nos possibilita obter as taxas para cada intervalo de tempo entre excitação e detecção. Na figura 4.16 cada ponto está relacionado a contribuição linear α na transferência de população devido ao corpo negro.

Figura 4.15 – As curvas mostram a dependência da população em $33S$ com relação ao estado alvo $33P$. As respectivas derivadas representam a taxa com que o estado $33P$ realiza transições para o estado $33S$ devido à interação com o campo de radiação térmica.

Figura 4.16 – Taxa de transferência de população de 33P para 33S em função do tempo entre excitação e detecção. Cada ponto é referente a inclinação das curvas teóricas fig. 4.15 obtidas do modelo de equações de taxas.

As simulações revelam que para tempos da ordem de $10 \mu s$ a transferência de população é por volta de 14 % do estado 33P para 33S e é quase inexistente para tempos da ordem de nanosegundos.

Nossas medidas foram realizadas em quatro intervalos de tempo $100 ns$, $1 \mu s$, $2 \mu s$ e $10 \mu s$ com excitação inicial do estado 33P. A observação dos estados 33S e 33P foram feitas sob ação de campo elétrico na condição de ressonância $E = 8.89 \pm 0.08 V/cm$ e fora da ressonância $E = 9.20 \pm 0.08 V/cm$.

O comportamento do parâmetro linear α para o experimento no estado 33P com campo elétrico de ressonância é semelhante ao de campo fora da ressonância, como era esperado, a comparação entre os dados experimentais e teóricos do parâmetro linear são mostrados na figura 4.17. O campo elétrico não modifica as transições induzidas pela radiação de corpo negro de maneira radical.

Figura 4.17 – Parâmetro linear α referente às contribuições de corpo negro para o estado $n = 33$ com campo elétrico fora da ressonância $E = 9.20 \pm 0.08 \text{ V/cm}$, e na condição de ressonância $E = 8.89 \pm 0.08 \text{ V/cm}$.

Para o tempo de $10 \mu\text{s}$ a taxa de transferência é de aproximadamente 15 % na ressonância e 12% fora, portanto, ambos os experimentos com campos elétricos diferentes apresentam parâmetros lineares que concordam muito bem com as simulações de corpo negro. Isto confirma que nosso modelo pode responder de maneira satisfatória a contribuição responsável por este processo. Os resultados experimentais do parâmetro quadrático β é apresentado na figura 4.18.

Figura 4.18 – Parâmetro quadrático β referente a interação de dois corpos para o estado $n = 33$ com campo elétrico de ressonância $E = 8.89 \pm 0.08 \text{ V/cm}$ (quadrados pretos), e fora dela $E = 9.20 \pm 0.08 \text{ V/cm}$ (losangos vermelhos).

Em relação a contribuição da interação de dois corpos, ambos os resultados apresentam uma contribuição quadrática para tempos pequenos da ordem de 100 *nanosegundos*. Nessa escala de tempo os átomos se encontram praticamente estáticos na armadilha resultado de sua pequena energia cinética com velocidades típicas $\sim 20\text{cms}^{-1}$ e o fenômeno responsável pela transferência inicial é a excitação direta pelo laser de excitação de pares atômicos em potenciais moleculares (8, 38). Podemos observar também que a contribuição relativa à contribuição de dois corpos aumenta em mais de 100 % para o experimento com campo elétrico na condição de ressonância o que mostra uma modificação na forma dos potenciais moleculares. A situação em que $\Delta E = 0$ entre os estados pode estar modificando as formas desses potenciais moleculares alterando as diversas distâncias interatômicas onde ocorrem os cruzamentos evitados ou avoid crossings. De modo que ocorra mudanças na taxa com que os estados trocam de potencial diabaticamente evidenciando um aumento significativo desse processo com menor tempo de saturação quando a energia entre esses estado é nula.

5 CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS

Nosso trabalho expôs importantes resultados relativo aos processos de interação entre átomos de Rydberg. O primeiro deles desvenda a dinâmica da interação que em muitos trabalhos é relacionada a processos de muitos corpos, onde a análise dos resultados é obtida por métodos numéricos (12-13, 36, 51). Nosso trabalho mostra claramente que o processo de transferência de estado depende apenas da interação entre dois átomos, ou seja, que a interação é um processo via dois corpos. Uma forte indicação de que o processo binário é responsável pela transferência de energia já podia ser vista em trabalhos anteriores de nosso grupo (7, 10, 45).

Em nosso último trabalho (50) mostramos que a transferência de população do estado nD para $(n+2)P$, pode ser explicado, via primeiros princípios, pelo conhecimento detalhado dos potenciais moleculares. Assim, a dinâmica no estado $nP + nP$ decorre apenas entre dois potenciais envolvidos no processo, porém, a forma desses potenciais é perturbada por potenciais vizinhos. Contudo, obter esses potenciais não é uma tarefa trivial. É preciso levar em conta contribuições de mais altas ordens no processo de interação, como interações via dipolo-dipolo, dipolo-quadrupolo e quadrupolo-quadrupolo, além do efeito Stark dc. O motivo de se levar em conta ordens maiores de interação e a presença de campo elétrico estático é a formação de cruzamentos proibidos que conduzem a transições diabáticas entre os estados.

O modelo de transições diabáticas semiclássico mostrou-se fiel aos resultados experimentais para o caso nD , dessa maneira a investigação dos estados nP com transferência para o estado nS é um passo importante na consolidação da teoria. As energias assintóticas entre os pares atômicos $nP + nP$ e $nS + (n+1)S$ possuem diferenças da ordem de $4 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$, semelhante à diferença de energia entre os pares $nD + nD$ e $(n+2)P + (n-2)F$. Esperamos, então, que o mesmo tratamento teórico explique os resultados deste trabalho. Em contraponto aos estados nD que possuíam um número enorme de potenciais

moleculares próximos, que deformavam radicalmente os potenciais dinâmicos, como visto na figura 2.7. Nos estados nP poucos potenciais participam do processo. Assim, a investigação da evolução dos estados nP em função do campo elétrico é um importante teste para a teoria.

Os potenciais moleculares para o processo $nP + nP \rightarrow nS + (n + 1)S$ estão em fase de processamento, resultado de uma cooperação internacional com o grupo do Prof. Shaffer da Universidade de Oklahoma nos Estados Unidos, que possui larga experiência no cálculo teórico desses potenciais. Essa cooperação foi importante para explicar alguns resultados como os processos $nS + nS$ do trabalho de Nascimento e colaboradores (8) e $nD + nD$ de Jader e colaboradores (41, 50).

Outro ponto importante dos resultados é a atuação da radiação de corpo negro na dinâmica do processo de transferência. É sabido da literatura que a radiação de corpo negro atua na redistribuição de estados (17, 49, 52-53), por processo de excitação ou desexcitação estimulada. Contudo, alguns trabalhos consideram a atuação da radiação de corpo negro como parte importante na transferência de populações. No processo de publicação do artigo (50) um dos assessores citou a atuação do BB na conexão de potenciais repulsivos a atrativos, levando ao aparecimento de ionização penning discutido na referência (51). Porém, essa interpretação é muito simplificada e acreditamos que transições diabáticas em posições de cruzamento proibido são majoritariamente responsáveis pelo processo.

Os resultados mostram que a ação do BB não é maior, se não apenas redistribuir populações, em estreito acordo com o modelo de taxas proposto. E que a importância dessa contribuição aumenta com o tempo e passa a ser significativa para tempos maiores que $3\mu s$. Nosso sistema experimental permite alcançar tempos entre excitação e subsequente observação por pulso de ionização da ordem de nanosegundos, e nestas escalas de tempo a radiação de corpo negro deve ser desprezada. Para tempos maiores podemos extrair dos dados experimentais essa contribuição utilizando o modelo teórico.

Em resumo, este trabalho mostra que campos elétricos dc podem ser utilizados para controlar a transferência de populações e que mesmo sob a ausência de campo, ocorre a excitação direta de potenciais moleculares. Que o processo se dá via ação de dois corpos e que a radiação de corpo negro apenas redistribui populações. É importante ressaltar que nenhuma

evidência de anisotropia do campo elétrico estático foi notada no experimento. As contribuições anisotrópicas se anulam, na média sobre todos os parâmetros de impacto, em direções diferentes daquela adotada para aplicação do campo elétrico. Em maior parte devido a natureza tridimensional da armadilha.

A armadilha magneto-óptica de que dispomos atualmente nos possibilita alcançar densidades não muito elevadas da ordem de $5 \times 10^9 \text{ átomos.cm}^{-3}$. Como a excitação de estados moleculares, que explica os resultados obtidos no experimento, tem forte dependência com o a região de distâncias interatômicas em que os cruzamentos proibidos ocorrem. Amostras mais densas possibilitariam a excitação de um maior número de átomos nessas regiões e observaríamos um aumento significativo na excitação desses potenciais moleculares.

Deste modo, nossos futuros experimentos tem como objetivo principal estudar esses processos numa armadilha óptica de dipolo, utilizando-se para isso um laser de CO_2 (54). A armadilha de dipolo confina amostras mais densas da ordem de $10^{12} \text{ átomos/cm}^3$, com isso esperamos observar um aumento nos processos de interação. Outra característica importante na armadilha de dipolo é que as amostras estarão alinhadas numa configuração quase-unidimensional, o que nos permitirá observar dependências angulares nos potenciais. E a observação de anisotropias pode ser possível. Para isso nossa nova montagem experimental contará com um sistema de campo elétrico estático que pode efetuar operações de rotação.

Outra fase da nova montagem experimental contempla a realização de uma rede óptica, para isso os feixes do laser de CO_2 serão retro-refletidos criando ondas estacionárias com regiões de mínimos de potenciais separados por $\sim 5 \mu m$ de distância. Essa construção confina átomos separados espacialmente em planos bidimensionais, onde novamente anisotropias na transição de estados podem ser observadas. Contamos também com um novo sistema de processamento de imagens da armadilha, que em conjunto com o campo de ionização seletiva nos fornecerá informações quanto aos estados excitados e sua localização espacial.

O conhecimento gerado na área de átomos frios em estados de Rydberg vem crescendo, em especial, devido ao seu arsenal de utilidades em sistemas emaranhados para

portas lógicas em computação quântica. Atualmente um enorme número de trabalhos vem sendo realizados, e muito ainda há para se investigar neste efervescente ramo de pesquisa.

REFERÊNCIAS

- 1 PONCZEK, I.R.; RUBIM DE PINHO, S. T.; ANDRADE, R.S.; ROCHA, J.F.; JÚNIOR, O. F.; RIBEIRO FILHO, A. Origens e evolução das idéias da física. Salvador : EDUFBA, 2002.
- 2 GALLAGHER, T. F. **Rydberg atoms**. Reports on Progress in Physics, v. 51, n. 2, p. 143–188, 1988.
- 3 DEMTRÖDER, W. Laser Spectroscopy. New York: Springer-Verlag, Second Edition, 1998.
- 4 COOK, R. J. Atomic motion in resonant radiation: an application of Ehrenfest's theorem. **Physical Review A**, v. 20, n. 1, p. 224-227, 1979.
- 5 COOK, R. J. Theory of resonance-radiation pressure. **Physical Review A**, v. 22, n. 3, p. 1078-1097, 1980.
- 6 RAAB, E. L.; PRENTISS, M.; CABLE, A.; CHU, S.; PRITCHARD, D. E. Trap of neutral sodium atoms with radiation pressure. **Physical Review Letters**, v. 59, n. 23, p. 2631-2634, 1987.
- 7 DE OLIVEIRA, A. L.; MANCINI, M. W.; BAGNATO, V. S.; MARCASSA, L. G. Rydberg cold collisions dominated by ultralong range potential. **Physical Review Letters**, v. 90, n. 14, p. 143002-1-143002-4, 2003.
- 8 NASCIMENTO, V. A.; CALIRI, L. L.; SCHWETTMANN, A.; SHAFFER, J. P.; MARCASSA, L. G. Electric field in the excitation of cold Rydberg-atoms pairs. **Physical Review Letters**, v. 102, n. 21, p. 213201-1-213201-4, 2009.
- 9 NASCIMENTO, V. A.; LAMOUR-REETZ, M.; CALIRI, L. L.; DE OLIVEIRA, A. L.; MARCASSA, L. G. Motion in an ultralong-range potential in cold-Rydberg-atom collisions. **Physical Review A**, v. 73, n. 3, p. 034703-1-034703-3, 2006.
- 10 ZANON, R. A. D. S.; MAGALHÃES, K. M. F.; DE OLIVEIRA, A. L.; MARCASSA, L. G. Time-resolved study of energy-transfer collisions in a sample of cold rubidium atoms. **Physical Review A**, v. 65, n.2, p. 023405-1-023405-4, 2002.

- 11 HAN, J.; GALLAGHER, T. F. Field ionization of the frozen Rydberg gas. **Physical Review A**, v. 77, n. 01, p. 015404-1-015404-4, 2008.
- 12 MOURACHKO, I.; COMPARAT, D.; DE TOMASI, F.; FIORETTI, A.; NOSBAUM, P.; AKULIN, V. M.; PILLET, P. Many-body effects in a frozen Rydberg gas. **Physical Review Letters**, v. 80, n. 2, p. 253–256, 1998.
- 13 TANNER, P. J.; HAN, J.; SHUMAN, E. S.; GALLAGHER, T. F. Many-body ionization in a frozen Rydberg gas. **Physical Review Letters**, v. 100, p. 043002-1-043002-4, 2008.
- 14 NOORDAM, L. D.; TEN WOLDE, A.; LAGENDIJK, A.; VAN LINDEN VAN DEN HEUVELL, H. B. Observation of radially localized atomic electron wave packets. **Physical Review Letters**, v. 61, n. 18, p. 2099-2101, 1988.
- 15 YEAZELL, J. A.; MALLALIEU, M.; PARKER, J.; STROUD JUNIOR, C. R. Classical periodic motion of atomic-electron wave packets. **Physical Review A**, v. 40, n. 9, p. 5040-5043, 1989.
- 16 ZIMMERMAN, M. L.; LITTMAN, M. G.; KASH, M. M.; KLEPPNER, D. Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms. **Physical Review A**, v. 20, n. 6, p. 2251-2275, 1979.
- 17 BRANDEN, D. B.; JUHASZ, T.; MAHLOKOZERA, T.; VESA, C.; WILSON, R. O.; ZHENG, M.; KORTYNA, A.; TATE, D. A. Radiative lifetime measurements of rubidium Rydberg states. **Journal of Physics B: atomic, molecular and optical physics**, v. 43, n. 01, p. 015002-1-015002-13, 2010.
- 18 MAGALHAES, K. M. F.; DE OLIVEIRA, A. L.; ZANON, R. A. D. S.; BAGNATO, V. S.; MARCASSA, L. G. Lifetime determination of high excited states of ^{85}Rb using a sample of cold atoms. **Optics Communications**, v. 184, n. 5-6, p. 385–389, 2000.
- 19 HÖBLUND B.; MEZGER P.G. Hydrogen emission line $n_{110} \rightarrow n_{109}$: detection at 5009 megahertz in galactic H II regions. **Science**, v. 150, n. 3694, p. 339-348, 1965.
- 20 FLANNERY, M. R.; OKS, E. Plasma screening within Rydberg atoms in circular states. **The European Physical Journal D**, v. 47, n. 1, p. 27–31, 2008.
- 21 KILLIAN, T. C.; LIM, M. J.; KULIN, S.; DUMKE, R.; BERGESON, S. D.; ROLSTON, S. L. Formation of Rydberg atoms in an expanding ultracold neutral plasma. **Physical Review Letters**, v. 86, n. 17, p. 3759–3762, 2001.

- 22 GROSS, M.; GOY, P.; FABRE, C.; HAROCHE, S.; RAIMOND, J. M. Maser oscillation and microwave superradiance in small systems of Rydberg atoms. **Physical Review Letters**, v. 43 n. 5, p. 343-346, 1979.
- 23 KIM, W.; BROWNELL J. H.; ONOFRIO R. Detectability of dissipative motion in quantum vacuum via superradiance. **Physical Review Letters**, v. 96, n. 20, p. 200402-1-200402-4, 2006.
- 24 ZHENG, SHI-BIAO; GUO, GUANG-CAN. Efficient scheme for two-atom entanglement and quantum information processing in cavity QED. **Physical Review Letters**, v. 85, n. 11, p. 2392-2395, 2000.
- 25 GAËTAN, A.; MIROSHNYCHENKO, Y.; WILK, T.; CHOTIA, A.; VITEAU, M.; COMPARAT, D.; PILLET, P.; BROWAEYS, A.; GRANGIER, P. Observation of collective excitation of two individual atoms in the Rydberg blockade regime. **Nature Physics**, v. 5, n. 02, p. 115-118, 2009.
- 26 URBAN, E.; JOHNSON, T. A.; HENAGE, T.; ISENHOWER, L.; YAVUZ, D. D.; WALKER, T. G.; SAFFMAN, M. Observation of Rydberg blockade between two individual atoms. **Nature Physics**, v. 5, n. 02, p. 110-114, 2009.
- 27 AMTHOR, T.; GIESE, C.; HOFMANN, S. S.; WEIDEMÜLLER, M. Evidence of antiblockade in an ultracold Rydberg gas. **Physical Review Letter**, v. 104, p. 013001-1-013001-4, 2010.
- 28 RYABTSEV, I. I.; TRETYAKOV, D. B.; BETEROV, I. I. Applicability of Rydberg atoms to quantum computers. **Journal of Physics B: atomics, molecular and optical physics**, v. 38, n. 2, p. S421-S436, 2005.
- 29 JAKSCH, D.; CIRAC, J. I.; ZOLLER, P.; ROLSTON, S. L.; CÔTÉ, R.; LUKIN, M. D. Fast quantum gates for neutral atoms. **Physical Review Letters**, v. 85, n. 10, p. 2208–2211, 2000.
- 30 LUKIN, M. D.; FLEISCHHAUER, M.; CÔTÉ, R.; DUAN, L. M.; JAKSCH, D.; CIRAC, J. I.; ZOLLER, P. Dipole blockade and quantum information processing in mesoscopic atomic ensembles. **Physical Review Letters**, v. 87, n. 3, p. 037901-1-03791-4, 2001.
- 31 YAVUZ, D. D.; KULATUNGA, P. B.; URBAN, E.; JOHNSON, T. A; PROITE, N; HENAGE, T; WALKER, T. G; SAFFMAN, M. Fast ground state manipulation of neutral atoms in mesoscopic optical traps. **Physical Review Letters**, v. 96, n. 6, p. 063001-1-063001-4, 2006.

- 32 YOUNG, K.C.; REINHARD, A.; POHL, T.; BERMAN, P. R.; RAITHEL, G. Mesoscopic Rydberg ensembles: beyond the pairwise-interaction approximation. **Physical Review A**, v.79, n. 4, p. 043420-1-043420-5, 2009.
- 33 ISENHOWER, L.; URBAN, E.; ZHANG, X. L.; GILL, A. T.; HENAGE, T.; JOHNSON, T. A.; WALKER, T. G.; SAFFMAN, M. Demonstration of neutral atom controlled-NOT quantum gate. **Physical Review Letters**, v. 104, n. 4, p.010503-1-010502-4, 2010.
- 34 MILLER, J. Neutral atoms are entangled in hyperfine states via Rydberg blockade. **Physical Review Letters**, v. 63, n. 2, p.12-17, 2010.
- 35 WILK, T.; GAËTAN, A.; EVELLIN, C.; WOLTERS, J.; MIROSHNYCHENKO, Y.; GRANGIER, P.; BROWAEYS, A. Entanglement of two individual neutral atoms using Rydberg blockade. **Physical Review Letters**, v. 104, n. 1, p. 010502-1-010502-4, 2010.
- 36 ANDERSON, W. R.; VEALE, J. R.; GALLAGHER, T. F. Resonant dipole-dipole energy transfer in a nearly frozen Rydberg gas. **Physical Review Letters**. v. 80, n. 2, p. 249-252, 1998.
- 37 LOWELL J. R. **Dipole-dipole interactions in a frozen gas**. 1998. 131p. Ph.D. Thesis, University of Virginia, Virginia, 1998.
- 38 OVERSTREET, K. R.; SCWETTMANN, A.; TALLANT, J.; SHAFFER, J. P. Photoinitiated collision between cold Cs Ryberg atoms. **Physical Review A**, v. 76, n. 1, p. 011403-1-011403-4, 2007.
- 39 LI, W.; TANNER, P. J.; GALLAGHER, T. F. Dipole-dipole excitation and ionization in an ultracold gas of Rydberg atoms. **Physical Review Letters**, v. 94, n. 17, p. 173001-1-173001-4, 2005.
- 40 SINGER, K.; STANOJEVIC, J.; WEIDEMÜLLER, M.; CÔTÉ, R. Long-range interactions between alkali Rydberg atom pairs correlated to the ns-ns, np-np and nd-nd asymptotes. **Jounal of Physics B: atomic, molecular and optical physics**, v. 38, n. 2, p. S295-S307, 2005.
- 41 CABRAL J. S. **Ressonâncias moleculares em átomos de Rydberg frios**. 2009. 68 p. Dissertação (Mestrado) — Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2009.

- 42 BOISSEAU, C.; SIMBOTIN, I.; CÔTÉ, R. Macrodimers: ultralong range Rydberg Molecules. **Physical Review Letters**, v.88, n.13, p.133004-1-133004-4, 2002.
- 43 AMTHOR, T.; REETZ-LAMOUR, M.; WESTERMANN, S.; DENSKAT, J.; WEIDEMÜLLER, M. Mechanical effect of Van der Waals interactions observed in real time in an ultracold Rydberg gas. **Physical Review Letters**, v. 98, n. 2, p. 023004-1-023004-4, 2007.
- 44 ZENER, C. Non-adiabatic crossing of energy levels. **Proceedings of the Royal Society of London**, v. 137, n. 833, p. 696-702, 1932.
- 45 CALIRI, L. L. **Processo binário em átomos de Rydberg**. 2006. 75p. Dissertação (Mestrado) — Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2006.
- 46 NASCIMENTO, V. A. **Dinâmica de colisões entre átomos de Rydberg frios**. 2006. 134p. Tese (Doutorado) — Instituto de Física de São Carlos, Universidade de São Paulo, São Carlos, 2006.
- 47 FOWLER, G. R. **Introduction to modern optics**. New York: Dover Publications, 1989.
- 48 SPENCER, W. P.; VAIDYANATHAN, A. G.; KLEPPNER, D.; DUCAS, T. W. Temperature dependence of blackbody-radiation-induced transfer among highly excited states of sodium. **Physical Review A**, v. 25, n. 1, p. 380-384, 1982.
- 49 GALVEZ, E. J.; LEWIS, J. R.; CHAUDHURI, B.; RASWEILER, J. J.; LATVAKOSKI, H. Multistep transitions between Rydberg states of Na induced by blackbody radiation. **Physical Review A**, v.51, n.5, p.4010-4017,1995.
- 50 CABRAL, J. S.; KONDO, J. M.; GONÇALVES, L. F.; MARCASSA, L. G.; BOOTH, D.; TALLANT, J.; SHAFFER, J. P. Manipulation of quantum state transfer in cold Rydberg atom collisions. *New Journal of Physics*, v. 12, n. 8, p.093023-1-093023-17, 2010.
- 51 AMTHOR, T.; REETZ-LAMOUR, M.; GIESE, C.; WEIDEMÜLLER, M. Modeling many-particle mechanical effects of an interacting Rydberg gas. **Physical Review A**, v. 76, n. 5, p. 054702-1-044702-4, 2007.
- 52 GALLAGHER, T.F., **Rydberg atoms**, Cambridge: Cambridge University Press, 1994.

53 GALLAGHER, T. F.; COOKE, W. E. Interaction of blackbody radiation with atoms. **Physical Review Letters**, v. 42, n. 13, p. 835-839, 1979.

54 TAKEKOSHI, T.; KNIZE, R. J. CO_2 laser trap for cesium atoms. *Optics Letters*, v. 21, n. 1, p. 77-79, 1996.