

**CORRELAÇÕES ESPACIAIS DE ESTADOS
MULTIFOTÔNICOS GERADOS VIA
CRISTAL DE PPKTP**

Olavo Cosme da Silva

dezembro 2008

**CORRELAÇÕES ESPACIAIS DE ESTADOS
MULTIFOTÔNICOS GERADOS VIA CRISTAL DE
PPKTP**

Olavo Cosme da Silva

Orientador: Prof. Sebastião José Nascimento de Pádua

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Física do Departamento de Física da **Universidade Federal de Minas Gerais**, como requisito parcial para a obtenção do grau de **Doutor em Física**.

dezembro 2008

Agradecimentos

- Agradeço ao Grande Arquiteto do Universo, DEUS.
- Agradeço ao Antony Reis, meu sobrinho, uma criança musical; à Maria Olaura, minha mãe, uma pedagoga como jamais existiu; ao Salvador Cirilo, meu pai, um gênio repleto de paciência; à Oliana Reis, minha irmã, médica de almas e de crianças como eu; ao Otávio Damião, meu irmão, pela busca infinda por música; às minhas afilhadas Mirela Modestina, Julie Isabela, Marília Pena Forte e Kênya Costa e a todos os meus antepassados.
- Agradeço ao meu orientador, Sebastião de Pádua, pelo apoio, confiança e amizade. Ele é minha referência como professor, é parte da minha família; e, para mim, a família é o bem mais valioso que existe.
- Agradeço à minha banca de projeto de tese: Carlos Monken, Marcelo França e Oscar Nassif, cujas discussões foram de enorme auxílio para minha formação; ao nosso grupo Enlight e a todos os professores do Departamento de Física, por todo o conhecimento construído durante a minha trajetória e, também, a todos do curso Pré-Universitário Padre Sebastião Teixeira, onde conheci minha paixão pela docência.
- Agradeço aos meus amigos: ao Álvaro Nunes, pelas aulas de eletrônica; ao Ivan Santos, pela idiosincrasia; ao Leonardo Neves, pelas conversas que atravessaram o Atlântico; ao Gustavo Lima, pelas discussões; ao

Caio Junior, pelos Beatles e pelas discussões; ao Marco Sagioro, pelas discussões (ser amigo é algo nato para ele); à Juliana Fonseca (a “mãe” no laboratório), por ser uma irmã. Aos meus irmãos acadêmicos Pierre Assis (*gentleman*), Hugo Velozo, Luiz Malta, Mariana Barros, Viviane Braga, Alejandra Judith, Daniel Barbosa, José Ferraz (Seu Zé) e Wanderson Pimenta, pela parceria e pelas discussões. Ao Alexandre Gutenberg, pela poesia e por ser um irmão; ao Ricardo Kagimura e ao Frederico Fioravante, amigos de balada; ao Ricardo Luiz, pelas lições de violão; ao Wallon Tadaiesky, pela curiosidade e erudição infinda; ao Pablo Saldanha, pela curiosidade e pelas discussões; ao Ovídio Sobral, pela amizade que atravessa a barreira do tempo; ao Marcos Aurélio Carvalho, amigo e irmão desde o primeiro período; ao Guilherme Carvalho, um irmão recente; ao Ivanildo Rodrigues, pelas discussões; à Marluce e à Ieda, por serem tão prestativas nos momentos desesperadores e burocráticos na Secretaria de Pós-graduação do Departamento de Física; à Ana Mara, pelo bom almoço na cantina; ao Aldo Delgado, pelas discussões e pelo bom humor; ao leitor desta tese.

- Agradeço às mulheres, flores que perfumam o meu caminhar. Josemeire Alves, a orquídea negra, flor raríssima que preencheu de música o meu viver. Daniela Fortunato, uma rosa vermelha repleta de carinho amigo e poesia. Sabrina Carara, uma violeta mulher com sorriso de criança, uma boa amiga. Renata Luiza, a tulipa amarela que me ensinou pintura e transformou-me no 100hor. Adriana Borges, rosa branca de olhos verdes, foi a primeira a mostrar-me poesia e o valor de uma amizade.
- Agradeço ao CNPq pelo apoio financeiro.

O fragmento musical abaixo é algo que me silencia e me deixa imóvel. São os 29 segundos finais do prelúdio da suíte para violoncelo (BWV 1007) de Johann Sebastian Bach, em uma transcrição para violão clássico feita por Andrés Segovia.



Figura: <http://dirk.meineke.free.fr/>

“A música me transmite hoje sensações como eu nunca senti antes. Ela me libera de mim mesmo, ela me separa de mim mesmo como se eu me olhasse, como se eu me percebesse de muito longe: ao mesmo tempo ela me fortalece, e sempre após uma noite musical (ouvi Carmen de Bizet quatro vezes) a minha manhã transborda de idéias e pensamentos corajosos. É como se eu estivesse mergulhado num elemento mais natural. A vida sem a música é simplesmente um erro, uma tarefa cansativa, um exílio.”

(Friedrich Nietzsche - carta para Peter Gast - Janeiro 1889)

Resumo

Nesta tese, apresentamos o estudo da produção de um e dois pares de fótons via conversão paramétrica descendente espontânea (CPD), usando cristal com domínio único (Beta Borato de Bário - BBO), cristal com inversão periódica de domínio (tais como o *Periodically Poled Potassium Titanyl Phosphate* - PPKTP) e um laser pulsado com modos travados. Demonstramos experimentalmente a transferência do espectro angular na CPD para um cristal PPKTP e comparamos a transferência do espectro angular usando um cristal BBO, tal como fora realizado por Monken, Souto Ribeiro e Pádua [Phys. Rev. A **57**, 3123 (1998)] para feixes contínuos. Mostramos teoricamente a transferência do espectro angular na CPD com cristais com inversão periódica de domínios e feixe de bombeamento pulsado. Em seguida, estudamos a geração de estados com um e dois pares de fótons na CPD e, verificamos, teórica e experimentalmente, a dependência da detecção múltipla de fótons (detecção simples, dupla, tripla e quádrupla), com a potência do laser de bombeamento para um cristal de BBO e PPKTP. Desenvolvemos uma teoria multi-modos para o Interferômetro de Hong-Ou-Mandel, com um e dois pares de fótons gerados em um estado singleto em polarização através da CPD, e a comparamos com medidas experimentais. Finalmente, usando um cristal com inversão periódica de domínio; estudamos experimentalmente a eficiência da geração de quatro fótons via CPD; estudamos também a transferência do espectro angular e a formação da imagem quântica, quando estados com quatro fótons são produzidos. Nossos resultados experimentais estão em bom acordo com as previsões teóricas.

Abstract

In this Thesis, we present the study of the production of one and two pair of photons via spontaneous parametric down conversion (SPDC), using a crystal with only one domain (Beta Barium Borate - BBO) and a periodic poled crystal (Periodically Poled Potassium Titanyl Phosphate - PPKTP) with a femtosecond mode-locked pulse laser. We demonstrated experimentally the angular spectrum transference in the SPDC for a PPKTP crystal and compared it with the angular spectrum transference for a BBO crystal, as shown by Monken, Souto Ribeiro and Pádua [Phys. Rev. A **57**, 3123 (1998)] for continuous beams. We demonstrated theoretically the angular spectrum transference in the SPDC with periodically poled crystals with pulsed pump beam. Then, we study the state generation of one and two photon pairs in the SPDC and verified theoretically and experimentally the dependence of the multiple photon detection (single counts, double, triple and quadruple coincidence) with the pump laser power for a BBO and a PPTKTP crystal. We developed a multimode theory for a Hong-Ou-Mandel interferometer with one and two photon pairs generated in a polarization singlet state through CPD and compared it with experimental measurements. Finally, we studied experimentally the four photons production efficiency via SPDC by using a periodically poled crystal; the angular spectrum transference and the quantum image formation in the four photon production. Our experimental results agree with the theoretical predictions.

Lista de Figuras

2.1	Eixos ópticos.	10
2.2	Esquema representando a propagação de um feixe formando um ângulo θ com o eixo óptico.	11
3.1	Ilustração dos campos incidentes e das polarizações não-lineares que aparecem como resposta.	18
3.2	Esquema representando o fenômeno de mistura de três ondas.	21
3.3	Função seno cardinal presente na intensidade do efeito não-linear.	23
3.4	Curva de dispersão de um cristal uniaxial negativo.	24
3.5	Curva de dispersão dos cristais do grupo KTP.	25
3.6	Geometria do ajuste por ângulo para geração de segundo harmônico.	26
3.7	Curva mostrando a derivada do índice de refração com relação à Temperatura em função do comprimento de onda em (μm).	28
3.8	Cristal com único período e cristal com inversão periódica de orientação	29
3.9	Variação espacial dos campos nos casos com casamento de fase, com quase casamento de fase e sem casamento de fase.	30
4.1	Conversão Paramétrica Descendente	37
4.2	Conversão Paramétrica Descendente - tipo I e tipo II	37

4.3	Conversão Paramétrica Descendente - tipo I e tipo II - visão frontal	39
4.4	Esquema experimental para verificação da transferência do espectro angular - um par de fótons gêmeos e cristal BBO	47
4.5	Perfil transversal do feixe do laser bombeador do BBO na transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos.	48
4.6	Contagens em coincidências mostrando a transferência do espectro angular usando BBO.	49
4.7	Comparação entre o perfil do laser bombeador e a taxa de coincidências da transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e BBO	50
4.8	Perfil do laser bombeador do BBO na transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos - Fenda dupla no feixe.	50
4.9	Comparação entre o Perfil do laser bombeador e a taxa de coincidências da transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e BBO - Fenda dupla no feixe.	51
4.10	Comparação entre o Perfil do laser bombeador e a taxa de coincidências da transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e BBO - Imagem de fenda dupla.	51
5.1	Esquema representando as componentes transversais dos vetores de onda gerados.	63
5.2	Eficiência do quase casamento.	64
5.3	Aparato experimental para a verificação da transferência do espectro angular - um par de fótons gêmeos e PPKTP	66
5.4	Perfil do laser bombeador do PPKTP na transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos.	67
5.5	Transferência do espectro angular usando PPKTP.	67
5.6	Comparação entre o perfil do laser bombeador e as coincidências em 5s - CPD usando PPKTP.	68

5.7	Perfil do laser bombeador do PPKTP na transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos - Fenda dupla no feixe.	68
5.8	Comparação entre o Perfil do laser bombeador e a taxa de coincidências da transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e PPKTP - Fenda dupla no feixe.	69
5.9	Perfil do laser bombeador do PPKTP na transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos - Imagem de fenda dupla.	70
5.10	Comparação entre o Perfil do laser bombeador e a taxa de coincidências da transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e PPKTP - Imagem de fenda dupla.	70
6.1	Esquema mostrando a geração quádrupla de fótons.	75
6.2	Aparato experimental para verificar as dependências das diversas contagens (simples, duplas, triplas e quádruplas) com relação à potência do feixe de bombeamento - dois e quatro fótons gerados por um BBO	77
6.3	Contagens simples em função da potência usando cristal BBO	82
6.4	Coincidências duplas em função da potência usando cristal BBO	85
6.5	Coincidências triplas em função da potência usando cristal BBO	87
6.6	Coincidências quádruplas em função da potência usando cristal BBO	89
6.7	O aparato experimental do Interferômetro de Hong-Ou-Mandel	91
6.8	Contagens simples no Interferômetro de Hong-Ou-Mandel	96
6.9	Coincidências com um dos braços bloqueado no Interferômetro de Hong-Ou-Mandel	97
6.10	Resultados Experimentais do Interferômetro de Hong-Ou-Mandel	99
6.11	Visibilidade do padrão de interferência do Interferômetro de Hong-Ou-Mandel em função da potência média	100

7.1	Esquema experimental para estudo de quatro fótons gerados pelo cristal PPKTP	103
7.2	Contagens simples em função da potência usando cristal PPKTP	105
7.3	Coincidências duplas em função da potência usando cristal PPKTP	106
7.4	Coincidências triplas em função da potência usando cristal PPKTP	107
7.5	Coincidências quádruplas em função da potência usando cristal PPKTP	108
7.6	Comparação entre o Perfil do laser bombeador e a taxa de coincidências da transferência do espectro angular para dois pares de fótons gêmeos e PPKTP na direção horizontal ao plano da mesa.	115
7.7	Comparação entre o Perfil do laser bombeador e a taxa de coincidências da transferência do espectro angular para dois pares de fótons gêmeos e PPKTP na direção vertical ao plano da mesa.	115
7.8	Comparação entre o Perfil do laser bombeador e a taxa de coincidências, quando colocamos um fio e uma lente no feixe de bombeamento.	116

Sumário

1	INTRODUÇÃO GERAL	1
I	ALGUNS FUNDAMENTOS DE ÓPTICA	4
2	Elementos da Óptica Linear	6
2.1	Equação da Onda Eletromagnética no Meio Material	6
2.1.1	Equações de Maxwell e a equação da onda eletromagnética no meio material	6
2.2	Óptica em Meios Anisotrópicos	7
2.2.1	Meios anisotrópicos e o tensor susceptibilidade linear	7
2.2.2	Propagação da luz em meios anisotrópicos	8
2.3	Introdução à Óptica de Fourier	12
2.3.1	Transformada de Fourier	12
2.3.2	O espectro angular e sua interpretação física	14
2.3.3	Propagação do espectro angular	14
2.3.4	Efeitos de uma abertura no espectro angular	16
3	Elementos da Óptica Não-Linear	17
3.1	Tensor susceptibilidade não-linear	17
3.2	Susceptibilidade não-linear efetiva	18
3.3	Mistura de Três Ondas	20
3.3.1	Mistura de três ondas	20
3.3.2	O casamento de fase	23
3.4	Cristais não-lineares com inversão periódica de domínio	27
3.4.1	O quase casamento de fase	27

II FONTES DE ESTADOS COM BIFÓTON. 33

4 Estados de Bifótons Gerados por Cristais Não-lineares	36
4.1 O Hamiltoniano de interação	36
4.2 Estado gerado na conversão paramétrica descendente espontânea utilizando cristais não-lineares com um único período	41
4.3 Transferência do espectro angular com estados bifótons e cristais não-lineares com um único período	43
4.3.1 Teoria	43
4.3.2 Resultados experimentais	45
5 Estados de Bifótons Gerados por Cristais Não-lineares com Inversão Periódica de Domínio	52
5.1 O Hamiltoniano de interação	52
5.2 Estado gerado na conversão paramétrica descendente espontânea utilizando cristais não-lineares com inversão periódica de domínio	56
5.3 Transferência do espectro angular com estados bifótons e cristais não-lineares periódicos	59
5.3.1 Teoria	59
5.3.2 Resultados experimentais	64

III FONTES DE ESTADOS COM QUATRO FÓTONS. 71

6 Estados com Quatro Fótons Gerados por Cristais Não-lineares com um Único Período	74
6.1 Dedução dos estados com quatro fótons gerados por cristais não-lineares com um único período	74
6.2 Relação entre a potência do feixe de bombeamento e a geração do estado com quatro fótons	76
6.2.1 Contagem simples de fótons	78
6.2.2 Coincidências duplas de fótons	81
6.2.3 Coincidências triplas de fótons	84
6.2.4 Coincidências quádruplas de fótons	86
6.3 Interferômetro de Hong-Ou-Mandel com um e dois pares de fótons	89
6.3.1 Teoria	89

6.3.2	Resultados experimentais	94
7	Estados com Quatro Fótons Gerados por Cristais Não-lineares com Inversão Periódica de Domínio	101
7.1	Dedução dos estados com quatro fótons gerados por cristais não-lineares com inversão periódica de domínio	101
7.2	Relação entre a potência do feixe de bombeamento e a geração do estado com quatro fótons em cristais não-lineares periódicos	102
7.2.1	Contagens simples de fótons	104
7.2.2	Coincidências duplas de fótons	104
7.2.3	Coincidências triplas de fótons	104
7.2.4	Coincidências quádruplas de fótons	107
7.3	Transferência do espectro angular para estados com quatro fótons gerados por cristais não-lineares com inversão periódica de domínio	109
7.3.1	Teoria	109
7.3.2	Resultados experimentais	114
IV	CONSIDERAÇÕES FINAIS E APÊNDICE	117
8	Conclusões e Perspectivas	118
A	Álgebra de Operadores Criação e Aniquilação	120
A.1	Comutadores	120
A.1.1	Um par de operadores	120
A.1.2	Dois pares de operadores	120
A.1.3	Três pares de operadores	121
A.1.4	Quatro pares de operadores	124
B	Artigos	126
B.1	<i>Hong-Ou-Mandel interferometer with one and two photons pairs</i> Author: Olavo Cosme, S. Pádua, Fabio A. Bovino, A. Mazzei, Fabio Sciarrino, and Francesco De Martini.	126
B.1.1	Resumo	126
B.2	<i>Controlling the transverse correlation in QPM parametric down-conversion</i> Author: Olavo Cosme, G. Lima, A. Delgado, C. H. Monken, and S. Pádua	127

B.2.1	Resumo	127
B.3	<i>Four photons generation using PPKTP</i>	
	Author: Olavo Cosme, P. L. Assis, A. N. Oliveira, and S. Pádua	127
B.3.1	Resumo	127
B.4	<i>Transfer of angular spectrum and quantum image formation in four photons states</i>	
	Author: Olavo Cosme, P. L. Assis, and S. Pádua	128
B.4.1	Resumo	128
B.5	<i>Geometrically induced singular behaviour of entanglement</i>	
	Author: D. Cavalcanti, P. L. Saldanha, O. Cosme, F. G. S. L. Brandão, C. H. Monken, S. Pádua, M. França Santos e M. O. Terra Cunha.	128
B.5.1	Resumo	128
B.6	<i>Coherent control with photon states</i>	
	Author: I. Rodrigues, O. Cosme, C. H. Monken, and S. Pádua	129
B.6.1	Resumo	129

Referências Bibliográficas **129**

Capítulo 1

INTRODUÇÃO GERAL

Com o intuito de gerar estados multifotônicos emaranhados espacialmente, buscamos produzir uma fonte intensa de fótons. Para tanto, implementamos um laser pulsado com modos travados, combinado com um cristal não-linear com inversão periódica de domínios. Este tipo de laser fornece pulsos curtos - da ordem de 200fs - com uma potência média semelhante a de um laser contínuo. Isto faz com que o número de fótons por pulso seja grande [1]. Cristais com inversão periódica de domínio têm apresentado grande eficiência de geração de segundo harmônico óptico [2–4, 6, 7]. Recentemente, estes cristais têm sido usados na criação de fótons gêmeos e têm mostrado, também, grande eficiência de geração [8–15]. Basicamente, estes cristais usam a técnica de quase-casamento de fase, em que ocorrem mudanças na orientação do meio não-linear antes que interferências destrutivas ocorram entre o campo gerado e o feixe laser de bombeamento [16, 18–20]. Durante o doutorado, trabalhamos na tarefa de unir estes dois elementos, um cristal eficiente e um laser pulsado com modos travados. Antes desta geração, verificamos a transferência do espectro angular e a formação de imagem quântica para um par de fótons usando estes cristais não-lineares com inversão periódica de domínio.

Assim, o primeiro objetivo desta tese é estender resultados anteriores do nosso grupo obtido na geração de dois fótons via CPD com cristais não-lineares com casamento de fases, para cristais com quase casamento de fases. O segundo objetivo é estender esses cálculos para a CPD onde quatro fótons são gerados.

Buscando uma apresentação didática das principais atividades realizadas durante o doutorado, optamos por dividir esta tese em quatro partes:

Na parte I - **Alguns fundamentos de óptica**, apresentamos elementos teóricos a serem usados no decorrer da tese. Inicialmente, serão expostos

alguns elementos de óptica linear, tais como: propagação da luz em meios anisotrópicos, birrefringência, dispersão, bem como a definição do espectro angular e a sua transferência, dentre outros. No capítulo sobre óptica não-linear, definimos, de forma sucinta, o tensor susceptibilidade não-linear de segunda ordem, além do fenômeno conhecido como mistura de três ondas e o fenômeno de geração de segundo harmônico óptico com técnicas de quase casamento de fase. Esta parte serve como auxílio para a compreensão dos temas tratados durante a tese. No entanto, para maiores detalhes, o leitor pode recorrer às seguintes referências: [16, 110, 112, 113, 116, 117].

Na parte II - **Fontes de estados com bifóton**, apresentamos a geração de estados de bifótons usando cristais com um único período, um BBO com 5mm de comprimento, e usando cristais com inversão periódica de domínio, um PPKTP com 10mm de comprimento e $11,525\mu\text{m}$ de período. Verificamos que a transferência do espectro angular e a formação de imagem quântica ocorre identicamente para os dois tipos de cristal. No entanto, a geração de fótons usando cristais com inversão periódica de domínios ocorre em uma banda mais estreita, dada pela função de geração. Esta parte II fornece as bases para o trabalho com quatro fótons pois, ao compararmos a transferência do espectro angular e a formação de imagem quântica quando se usam cristais não-lineares com inversão periódica de domínios com o caso em que se usam cristais não-lineares com um único período, podemos trabalhar o caso com quatro fótons.

Na parte III - **Fontes de estados com quatro fótons**, estudamos estados com um e com dois pares de fótons. O estado com quatro fótons, aqui, é gerado a partir da conversão paramétrica descendente simultânea de dois fótons do feixe de bombeamento, de forma que os quatro fótons gerados, possuem as mesmas características do caso em que se geram pares de fótons, tais como: comprimento de onda central dos filtros de interferência, frequência de trabalho dos elementos ópticos e dos detectores. Inicialmente, verificamos as dependências das detecções simples, duplas, triplas e quádruplas com relação à potência do feixe de bombeamento, usando cristais com um único período. Apresentamos a teoria do Interferômetro de Hong-Ou-Mandel com um e dois pares de fótons em um estado singleto em polarização e comparamos a nossa teoria com resultados experimentais obtidos na universidade de Roma. Em seguida, avaliamos as dependências das contagens diversas (contagens simples, duplas, triplas e quádruplas) em termos da potência do feixe laser de bombeamento, para um cristal com inversão periódica de domínios e, finalmente, verificamos a transferência do espectro angular e a formação de imagem quântica, usando estados com quatro fótons gerados por cristais com inversão periódica de domínio.

Na parte IV - **Considerações finais e apêndice**, apresentamos uma discussão dos resultados da tese, bem como, as possíveis projeções apontadas pelos resultados que obtivemos. Finalizamos mostrando uma pequena álgebra de comutadores e um resumo de cada trabalho gerado por esta tese. Encontram-se anexados a esta tese três artigos. Anexo 1 o artigo de Monken e colaboradores referente à transferência do espectro angular e formação de imagem quântica; no Anexo 2 o artigo referente à transição de fase quântica, artigo que compõe a tese de Pablo Saldanha e não será tratado nesta tese; no Anexo 3 o artigo referente ao controle coerente com fótons, artigo que compõe a tese de Ivanildo Rodrigues e não será tratado nesta tese.

Parte I

ALGUNS FUNDAMENTOS DE ÓPTICA

Introdução

Nesta primeira parte, apresentamos alguns fundamentos de Óptica que são usados no restante da tese.

No capítulo 2, referente à Óptica Linear, iniciamos com a dedução da equação da onda eletromagnética em um meio dielétrico. Esta equação é usada nas outras seções desta primeira parte e em cada seção ela sofre uma adaptação diferente. Em todas as adaptações consideramos o caso em que não há corrente de cargas e os meios são não magnéticos.

Há, ainda, uma seção sobre meios anisotrópicos. Nesta, a modificação feita na onda eletromagnética é a inserção do tensor susceptibilidade linear. A susceptibilidade linear relaciona o campo aplicado com a polarização criada no meio material devido a presença do campo aplicado. Durante esta seção, apresentamos conceitos como birrefringência e eixo óptico, úteis para compreensão dos processos de conversão paramétrica descendente, tratados mais adiante na tese.

Na seção sobre Óptica de Fourier apresentamos alguns fundamentos de Transformada de Fourier, além da definição do espectro angular e a sua propagação por espaço livre e por aberturas. Esta seção introduz um dos principais resultados desta tese, a propagação do espectro angular e a formação de imagem quântica com pares de fótons criados por cristais não-lineares.

No capítulo 3, referente à Óptica Não-linear, apresentamos uma definição formal de susceptibilidade não-linear e estudamos efeitos de mistura de três ondas envolvendo o casamento de fase e o quase casamento de fase. Estes conceitos - casamento de fase e quase casamento de fase -, fundamentam o estudo da geração de estados bifótons e de estados multifotônicos envolvendo cristais com inversão periódica de domínio e cristais com um único período, apresentados mais adiante na tese.

Capítulo 2

Elementos da Óptica Linear

2.1 Equação da Onda Eletromagnética no Meio Material

2.1.1 Equações de Maxwell e a equação da onda eletromagnética no meio material

As equações de Maxwell em um meio material, na forma diferencial, são dadas por [110]:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho, \quad (2.1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \quad (2.2)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \quad (2.3)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}, \quad (2.4)$$

onde

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}), \quad (2.5)$$

$$\vec{D} = \varepsilon_0\vec{E} + \vec{P}. \quad (2.6)$$

Aqui, \vec{D} é o deslocamento elétrico no meio material, ρ é a densidade volumétrica de cargas, \vec{B} é a indução magnética, \vec{H} é o campo magnético, \vec{E} é o campo elétrico, \vec{M} é a magnetização do meio, \vec{P} é a polarização elétrica, μ_0 é a permissividade magnética do vácuo e ε_0 é a permeabilidade elétrica do vácuo.

A equação de onda na matéria é dada pela seguinte expressão:

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial \vec{J}}{\partial t} \quad (2.7)$$

A expressão acima, Eq. (2.7), é obtida das equações de Maxwell (2.1), (2.2), (2.3) e (2.4), quando avaliamos o rotacional da Lei de Faraday (Eq. (2.3)) e usamos a Lei de Ampère-Maxwell (Eq. (2.4)). Nesta expressão (2.7), temos a equação de uma onda cuja fonte é dada pela variação temporal da densidade superficial de corrente ou pela variação temporal, em segunda ordem, da polarização produzida no meio. No caso de meios não condutores, $-\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}$ é o termo importante. Este propicia efeitos como birrefringência, absorção e atividade óptica. No caso de metais, $-\mu_0 \frac{\partial \vec{J}}{\partial t}$ é o termo importante, pois explica a grande opacidade e a alta reflectância dos metais. Adiante, usaremos esta equação de onda na matéria para deduzir efeitos não lineares.

2.2 Óptica em Meios Anisotrópicos

2.2.1 Meios anisotrópicos e o tensor susceptibilidade linear

Meios anisotrópicos são meios em que a polarização produzida por um campo elétrico aplicado não é simplesmente uma constante escalar multiplicada pelo campo. A polarização, resposta do meio ao campo, é dada por um tensor multiplicado pelo campo aplicado. Assim, temos, em uma determinada direção da polarização, a contribuição de todas as componentes do campo aplicado. A expressão abaixo representa a relação entre o campo elétrico aplicado e a polarização para um meio anisotrópico geral [110]:

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \check{\chi} \vec{E} \quad (2.8)$$

sendo

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{bmatrix} = \varepsilon_0 \begin{bmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} & \chi_{13} \\ \chi_{21} & \chi_{22} & \chi_{23} \\ \chi_{31} & \chi_{32} & \chi_{33} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix}. \quad (2.9)$$

Para os casos em que não temos absorção e nem atividade óptica, podemos escolher um conjunto de eixos tal que o tensor susceptibilidade linear possa ser escrito da seguinte forma:

$$\check{\chi} = \begin{bmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} \end{bmatrix}. \quad (2.10)$$

Aqui, χ_{ii} , onde $(i = 1, 2, 3)$, é conhecida como susceptibilidade principal. Os eixos deste novo sistema de coordenadas são chamados de eixos principais.

2.2.2 Propagação da luz em meios anisotrópicos

Estamos interessados na propagação dos campos eletromagnéticos em meios transparentes e sem carga livre, ou seja, $\vec{J} = 0$. Assim, a equação da onda dada pela Eq. (2.7) se simplifica:

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{c^2} \check{\chi} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2}. \quad (2.11)$$

Aqui, $\check{\chi}$ é o tensor susceptibilidade linear expresso em seus eixos principais.

Consideremos o campo elétrico expresso em ondas planas $e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}$. Assim, de (2.11) obtemos

$$\vec{k} \times (\vec{k} \times \vec{E}) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\frac{\omega^2}{c^2} \check{\chi} \vec{E}. \quad (2.12)$$

A expressão acima pode ser decomposta nas três componentes:

$$\begin{aligned} \left(-k_y^2 - k_z^2 + \frac{\omega^2}{c^2}\right) E_x + k_x k_y E_y + k_x k_z E_z &= -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{11} E_x, \\ k_y k_x E_x + \left(-k_x^2 - k_z^2 + \frac{\omega^2}{c^2}\right) E_y + k_y k_z E_z &= -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{22} E_y, \\ k_z k_x E_x + k_z k_y E_y + \left(-k_x^2 - k_y^2 + \frac{\omega^2}{c^2}\right) E_z &= -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{33} E_z. \end{aligned} \quad (2.13)$$

Quando escolhermos uma direção de propagação na expressão (2.13), $k = k_x$ e $k_y = k_z = 0$, por exemplo, obtemos as seguintes expressões:

$$\begin{aligned} \frac{\omega^2}{c^2} E_x &= -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{11} E_x \Rightarrow E_x = 0, \\ \left(-k^2 + \frac{\omega^2}{c^2}\right) E_y &= -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{22} E_y \Rightarrow \frac{\omega}{k} = \frac{c}{\sqrt{1 + \chi_{22}}}, \\ \left(-k^2 + \frac{\omega^2}{c^2}\right) E_z &= -\frac{\omega^2}{c^2} \chi_{33} E_z \Rightarrow \frac{\omega}{k} = \frac{c}{\sqrt{1 + \chi_{33}}}. \end{aligned} \quad (2.14)$$

Sendo ω/k a velocidade de fase da onda, o conjunto de equações acima implica em velocidades de fase distintas para a onda oscilando na direção y

comparada com a onda oscilando na direção z. Esta característica é chamada de **birrefringência**. Podemos repetir o mesmo procedimento para alguma outra direção e definir, assim, três índices de refração principais:

$$n_1 = \sqrt{1 + \chi_{11}}, \quad (2.15)$$

$$n_2 = \sqrt{1 + \chi_{22}} \quad (2.16)$$

e

$$n_3 = \sqrt{1 + \chi_{33}}. \quad (2.17)$$

Reescrevendo a Eq. (2.13):

$$\begin{aligned} \left(-k_y^2 - k_z^2 + \frac{n_1^2 \omega^2}{c^2}\right) E_x + k_x k_y E_y + k_x k_z E_z &= 0 \\ k_y k_x E_x + \left(-k_x^2 - k_z^2 + \frac{n_2^2 \omega^2}{c^2}\right) E_y + k_y k_z E_z &= 0 \\ k_z k_x E_x + k_z k_y E_y + \left(-k_x^2 - k_y^2 + \frac{n_3^2 \omega^2}{c^2}\right) E_z &= 0. \end{aligned} \quad (2.18)$$

O sistema linear (2.18) é compatível e determinado, se o determinante da seguinte matriz é nulo:

$$\begin{bmatrix} \left(-k_y^2 - k_z^2 + \frac{n_1^2 \omega^2}{c^2}\right) & k_x k_y & k_x k_z \\ k_y k_x & \left(-k_x^2 - k_z^2 + \frac{n_2^2 \omega^2}{c^2}\right) & k_y k_z \\ k_z k_x & k_z k_y & \left(-k_x^2 - k_y^2 + \frac{n_3^2 \omega^2}{c^2}\right) \end{bmatrix}, \quad (2.19)$$

ou seja,

$$\begin{aligned} &\left(-k_y^2 - k_z^2 + \frac{n_1^2 \omega^2}{c^2}\right) \left(-k_x^2 - k_z^2 + \frac{n_2^2 \omega^2}{c^2}\right) \left(-k_x^2 - k_y^2 + \frac{n_3^2 \omega^2}{c^2}\right) \\ &+ 2k_x^2 k_y^2 k_z^2 - k_x^2 k_z^2 \left(-k_x^2 - k_z^2 + \frac{n_2^2 \omega^2}{c^2}\right) - k_y^2 k_z^2 \left(-k_x^2 - k_z^2 + \frac{n_1^2 \omega^2}{c^2}\right) \\ &\quad - k_x^2 k_y^2 \left(-k_x^2 - k_y^2 + \frac{n_3^2 \omega^2}{c^2}\right) = 0. \end{aligned} \quad (2.20)$$

Na expressão acima, Eq. (2.20), temos sempre uma esfera e um elipsóide relacionando as direções dos k 's. Consideremos $k_z = 0$, por exemplo, então

$$\left[\left(-k_y^2 + \frac{n_1^2 \omega^2}{c^2}\right) \left(-k_x^2 + \frac{n_2^2 \omega^2}{c^2}\right) - k_x^2 k_y^2 \right] \left(-k_x^2 - k_y^2 + \frac{n_3^2 \omega^2}{c^2}\right) = 0,$$

o que implica em:

$$k_x^2 + k_y^2 = \frac{n_3^2 \omega^2}{c^2}, \quad (2.21)$$

$$\frac{k_x^2}{(n_2 \omega/c)^2} + \frac{k_y^2}{(n_1 \omega/c)^2} = 1. \quad (2.22)$$

Observe que, dependendo dos valores de n_1 , n_2 e n_3 , temos as configurações representadas na Fig. 2.1. Quando os três índices de refração são distin-

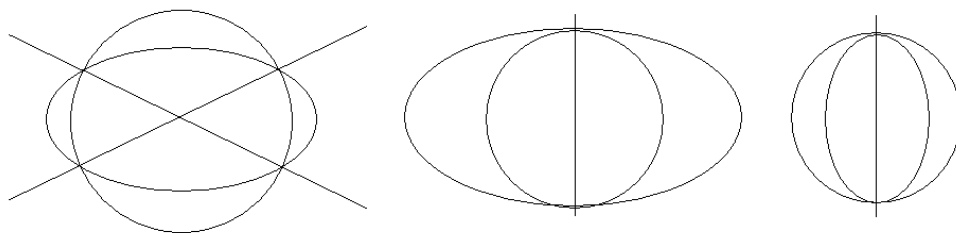


Figura 2.1: *Configurações possíveis para a distribuição das componentes dos vetores de onda k dentro do cristal, no plano $k_x k_y$. Primeiro caso $n_1 \neq n_2 \neq n_3$, segundo caso $n_1 > n_2 = n_3$ e terceiro caso $n_1 < n_2 = n_3$*
[110,113]

tos entre si, temos a configuração representada no primeiro caso e, quando dois dos três índices de refração se repetem, temos as configurações do caso dois e três da Fig 2.1. Nas intersecções entre a circunferência e a elipse, temos as ondas viajando com a mesma velocidade de fase. Estas direções são denominadas **eixos ópticos** e, para o caso em que os três índices de refração são distintos, temos dois eixos ópticos e o cristal é chamado cristal biaxial. Quando dois dos três índices refração são iguais, ocorrerá apenas um eixo óptico e o cristal é chamado cristal uniaxial. Nos cristais uniaxiais, chamamos de índices de refração ordinário o índice que se repete; e o outro índice é denominado índice de refração extraordinário. Podemos ter dois tipos de cristais uniaxiais: os cristais uniaxiais positivos e uniaxiais negativos. O cristais uniaxiais positivos têm o índice de refração ordinário menor que o índice de refração extraordinário; e os cristais uniaxiais negativos possuem a característica inversa.

Agora, considere as susceptibilidades principais dadas na matriz da Eq. (2.10). Podemos encontrar uma expressão para o deslocamento elétrico \vec{D} , da seguinte forma:

$$D_j = \varepsilon_0(1 + \chi_{jj})E_j = \epsilon_j E_j, \quad (2.23)$$

com $j = 1, 2$ e 3 . Considerando meios não magnéticos, a densidade de energia armazenada no campo elétrico é dada por $U = \frac{1}{2} \vec{E} \cdot \vec{D}$. Em relação aos eixos principais, temos uma superfície de energia constante no espaço-D

$$\frac{D_x^2}{\epsilon_x} + \frac{D_y^2}{\epsilon_y} + \frac{D_z^2}{\epsilon_z} = 2U \quad (2.24)$$

Definindo $\vec{r} = \vec{D}/\sqrt{2U\epsilon_0}$ e considerando a superfície constante de energia Eq. (2.24), temos

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1, \quad (2.25)$$

chamada de indicatriz óptica [113], com $n_j = \epsilon_j/\epsilon_0$. Esta equação permite determinar propriedades ópticas do cristal por construção geométrica. Consideremos o caso de um cristal uniaxial com um feixe que se propaga formando um ângulo θ com o eixo óptico de acordo com a Fig. 2.2.

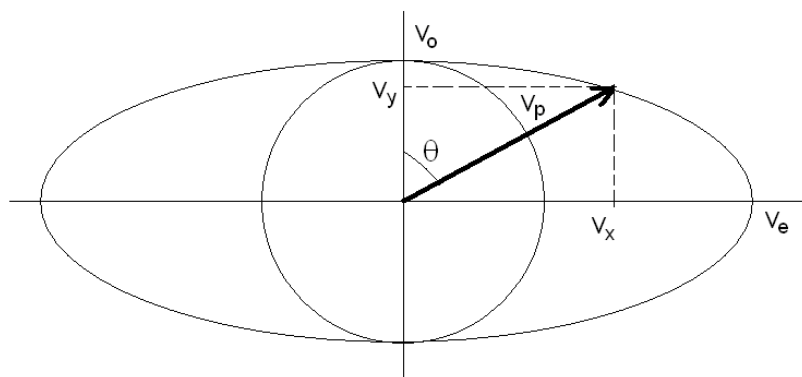


Figura 2.2: Esquema representando a propagação de um feixe formando um ângulo θ com o eixo óptico.

Sabendo que

$$v_x = v_p \sin \theta \quad (2.26)$$

$$v_y = v_p \cos \theta, \quad (2.27)$$

usando a Eq. (2.22) e substituindo $v_i = k_i/\omega$, temos:

$$\frac{v_x^2}{n_e^2} + \frac{v_y^2}{n_o^2} = \frac{1}{c^2}. \quad (2.28)$$

Substituindo as expressões (2.26) e (2.27) na expressão (2.28), temos uma relação entre o índice de refração do feixe propagante e o ângulo θ formado entre este feixe propagante e o eixo óptico dado por:

$$\frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} = \frac{1}{n(\theta)^2}, \quad (2.29)$$

onde $n(\theta) = cv_p(\theta)$.

Portanto, o índice de refração depende da direção de propagação da onda. Quando $\theta = 0$, o vetor \vec{k} está ao longo do eixo óptico e não há birrefringência. No entanto, quando $\theta = 90^\circ$ a birrefringência é máxima.

2.3 Introdução à Óptica de Fourier

O conteúdo desta seção foi baseado no estudo das referências [111, 112, 117].

2.3.1 Transformada de Fourier

Frequentemente, em Física Matemática, encontramos um par de funções relacionadas por uma expressão da forma [111]:

$$g(\alpha) = \int_b^a f(t)K(\alpha, t)dt \quad (2.30)$$

A função $g(\alpha)$ é chamada de função transformada de $f(t)$ com o kernel $K(\alpha, t)$. A operação pode ser interpretada como o mapeamento de uma função $f(t)$ no espaço t em uma outra função $g(\alpha)$ no espaço α .

A Transformada de Fourier tem a seguinte forma:

$$g(\alpha) = \int_{-\infty}^{\infty} f(t)e^{i\alpha t}dt \quad (2.31)$$

A transformada de Fourier pode ser considerada, também, como uma decomposição matemática de funções [112]. Na Eq. (2.31) a função $f(t)$ descreve os pesos que devem ser aplicados a cada função elementar $e^{i\alpha t}$, de forma que se construa a função $g(\alpha)$.

Trabalharemos com a transformada de Fourier bidimensional, que é dada pela expressão:

$$TF\{g\} = G(f_x, f_y) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} g(x, y) \exp[-i2\pi(f_x x + f_y y)] dx dy, \quad (2.32)$$

onde $TF\{g\}$ é a transformada de Fourier da função $g(x, y)$. f_x e f_y são as frequências espaciais. Similarmente, temos a transformada inversa de Fourier dada por:

$$TF^{-1}\{G\} = g(x, y) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} G(f_x, f_y) \exp [i2\pi(f_x x + f_y y)] df_x df_y. \quad (2.33)$$

Dentre os diversos teoremas da Transformada de Fourier destacaremos:

Teorema do deslocamento

Sendo $G(f_x, f_y) = TF\{g(x, y)\}$, então:

$$TF\{g(x - a, y - b)\} = G(f_x, f_y) \exp [-i2\pi(f_x a + f_y b)]. \quad (2.34)$$

Teorema da convolução

O Teorema da Convolução é dado pela seguinte expressão [111, 112]:

$$TF \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} g(\xi, \eta) h(x - \xi, y - \eta) d\xi d\eta \right\} = G(f_x, f_y) H(f_x, f_y), \quad (2.35)$$

onde $G(f_x, f_y) = TF\{g\}$, $H(f_x, f_y) = TF\{h\}$. Ou seja, a transformada de Fourier da convolução de duas funções é inteiramente equivalente a uma operação mais simples de multiplicar as transformadas individuais de Fourier de cada função.

Teorema da autocorrelação

Usando o Teorema da Convolução para o caso da função g e o complexo conjugado de g , g^* , obtemos de (2.35):

$$TF \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} g(\xi, \eta) g^*(x - \xi, y - \eta) d\xi d\eta \right\} = |G(f_x, f_y)|^2, \quad (2.36)$$

onde vemos que a transformada de Fourier da autocorrelação da função $g(x, y)$, dada pela convolução da função $g(x, y)$ com a função $g^*(-x, -y)$, é igual ao módulo quadrado da transformada de Fourier da função $g(x, y)$.

2.3.2 O espectro angular e sua interpretação física

Considere a equação da onda eletromagnética deduzida na seção 2.1, dada pela Eq. (2.7), em um meio dielétrico linear (onde não ocorrem processos de misturas de ondas e $P = \chi\varepsilon_0 E$), sem cargas livres ($\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0$), não magnético (a permeabilidade magnética é constante e igual a do vácuo, μ_0), homogêneo (a permissividade elétrica é constante na direção de propagação do campo) e isotrópico (as propriedades ópticas independem da direção de polarização do campo). Assim, a Eq. (2.7) tem a seguinte forma:

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0, \quad (2.37)$$

onde n é o índice de refração, definido por $n = (1 + \chi)^{1/2}$, χ é a susceptibilidade elétrica do meio dielétrico, $c = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \varepsilon_0}}$. Quando consideramos uma dependência temporal harmônica para o campo elétrico ($e^{i\omega t}$), a expressão (2.37) toma a forma da Equação de Helmholtz:

$$\nabla^2 E + k^2 E = 0. \quad (2.38)$$

onde $k = n\omega/c$.

Considere o caso em que uma onda transversal incidente no plano (x, y) , se propague na direção z : sendo o campo complexo através do plano $z = 0$, representado por $E(x, y, 0)$ e a sua transformada de Fourier bidimensional é dada por:

$$\widetilde{W}(f_x, f_y; 0) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E(x, y, 0) \exp[-i2\pi(f_x x + f_y y)] dx dy. \quad (2.39)$$

Como dito anteriormente, na seção 2.3.1, podemos avaliar a transformada de Fourier inversa da expressão acima e obter a expressão do campo:

$$E(x, y, 0) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \widetilde{W}(f_x, f_y; 0) \exp[i2\pi(f_x x + f_y y)] df_x df_y. \quad (2.40)$$

Observando a Eq. (2.40), vemos que o campo pode ser decomposto em ondas planas com as frequências espaciais f_x e f_y , com pesos dados pela amplitude $\widetilde{W}(f_x, f_y; 0)$. Por esse motivo, a amplitude $\widetilde{W}(f_x, f_y; 0)$ é chamada de **espectro angular** do campo $E(x, y, 0)$.

2.3.3 Propagação do espectro angular

Simplificaremos a notação anterior definindo:

$$k_x = 2\pi f_x \quad k_y = 2\pi f_y.$$

Assim,

$$E(x, y, 0) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \widetilde{W}(k_x, k_y; 0) \exp [i(k_x x + k_y y)] dk_x dk_y \quad (2.41)$$

e

$$\widetilde{W}(k_x, k_y; 0) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E(x, y, 0) \exp [-i(k_x x + k_y y)] dx dy. \quad (2.42)$$

onde estamos chamando o espectro angular de $\widetilde{W}(k_x, k_y; 0)$, nesta seção. Queremos, agora, avaliar o campo em um plano (x,y) localizado na posição z, $E(x, y, z)$. Sabendo que

$$\widetilde{W}(k_x, k_y; z) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E(x, y, z) \exp [-i(k_x x + k_y y)] dx dy, \quad (2.43)$$

podemos escrever o campo da seguinte forma:

$$E(x, y, z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \widetilde{W}(k_x, k_y; z) \exp [i(k_x x + k_y y)] dk_x dk_y. \quad (2.44)$$

Lembrando que o campo elétrico da onda eletromagnética satisfaz a equação de Helmholtz (2.38), obtemos a seguinte equação para o espectro angular ao substituir (2.44) em (2.38):

$$\frac{d^2}{dz^2} \widetilde{W}(k_x, k_y; z) + (k^2 - k_x^2 - k_y^2) \widetilde{W}(k_x, k_y; z) = 0, \quad (2.45)$$

cuja solução é dada por

$$W(k_x, k_y; z) = W(k_x, k_y; 0) e^{i\sqrt{k^2 - k_x^2 - k_y^2} z}. \quad (2.46)$$

Finalmente, após substituir (2.46) em (2.44), o campo elétrico na posição z adquire a seguinte forma:

$$E(x, y, z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \widetilde{W}(k_x, k_y; 0) e^{i(k_x x + k_y y)} e^{i\sqrt{k^2 - k_x^2 - k_y^2} z} dk_x dk_y. \quad (2.47)$$

O limite de integração é dado pelo plano $k_x k_y$, uma vez que k^2 é constante. Assim, caso tenhamos $k^2 > k_x^2 + k_y^2$, a propagação do espectro angular implica em uma expansão do campo em ondas planas e quando $k^2 < k_x^2 + k_y^2$,

temos um decaimento exponencial ditado por $e^{-\sqrt{k_x^2+k_y^2-k^2}z}$. Estas ondas que decaem com z são conhecidas como ondas evanescentes e são importantes para o campo próximo, ou seja, para z da ordem do comprimento de onda e será aqui desconsiderado, pois os efeitos que trabalharemos tratam de propagação do espectro por longas distâncias.

Simplificaremos um pouco mais a notação definindo os vetores:

$$\vec{q} = k_x \hat{i} + k_y \hat{j} \quad (2.48)$$

$$\vec{\rho} = x \hat{i} + y \hat{j}. \quad (2.49)$$

Assim, o campo elétrico e o espectro angular adquirem a seguinte forma:

$$E(\vec{\rho}, z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} W(\vec{\rho}, 0) e^{i\vec{\rho} \cdot \vec{q}} e^{i\sqrt{k^2-q^2}z} d\vec{q} \quad (2.50)$$

$$\widetilde{W}(\vec{q}, z) = \int_{-\infty}^{\infty} E(\vec{\rho}, z) e^{-i\vec{\rho} \cdot \vec{q}} d\vec{\rho}. \quad (2.51)$$

2.3.4 Efeitos de uma abertura no espectro angular

Suponha que um obstáculo opaco e com uma abertura insira uma perturbação no plano $z=0$. Verificaremos, agora, a perturbação desta abertura no espectro angular. Definindo uma função transmitância da abertura como a razão entre o campo transmitido $E_t(\vec{\rho}, 0)$ e o campo incidente $E_i(\vec{\rho}, 0)$ para cada $(\vec{\rho})$ no plano $z=0$,

$$t_A(\vec{\rho}) = \frac{E_t(\vec{\rho}, 0)}{E_i(\vec{\rho}, 0)}, \quad (2.52)$$

temos:

$$E_t(\vec{\rho}, 0) = t_A(\vec{\rho}) E_i(\vec{\rho}, 0). \quad (2.53)$$

Com o uso do teorema da convolução, podemos relacionar o espectro angular do campo incidente $W_i(\vec{q}; 0)$ e o espectro angular do campo transmitido $W_t(\vec{q}; 0)$, da seguinte forma:

$$W_t(\vec{q}; 0) = [W_i(\vec{q}) \otimes T(\vec{q})], \quad (2.54)$$

onde

$$T(\vec{q}) = \int_{-\infty}^{\infty} t_A(\vec{\rho}) \exp[-i(\vec{q} \cdot \vec{\rho})] d\vec{\rho} \quad (2.55)$$

é a transformada de Fourier da função transmitância da abertura e \otimes simboliza convolução.

O espectro angular de um campo elétrico com um distúrbio dado por uma abertura, é dado pela convolução do espectro angular do campo incidente com a transformada de Fourier da função transmitância da abertura.

Capítulo 3

Elementos da Óptica Não-Linear

Os tópicos apresentados neste capítulo foram baseados no estudo das seguintes referências [16–20].

3.1 Tensor susceptibilidade não-linear

Meios não-lineares são meios em que a resposta ao campo aplicado, a polarização, é expressa via uma expansão, em série de potências, do campo incidente, ou seja,

$$\vec{P} = \chi^{(1)}\vec{E}(t) + \chi^{(2)}\vec{E}^2(t) + \chi^{(3)}\vec{E}^3(t) + \dots \quad (3.1)$$

Aqui, P é a polarização produzida no meio devido à presença do campo E . Na Fig. 3.1, abaixo, temos dois casos em que a resposta do meio não é linear ao campo incidente ao meio. Suponha que o campo está polarizado e o vetor polarização é paralelo ao campo incidente. Em ambos casos, na figura, os campos incidentes são senoidais (representados pelas linhas tracejadas) e as polarizações são alterações não-lineares do campo (representadas pelas linhas sólidas). As funções usadas nas Fig. 3.1 foram $\sin(\omega t)$ para o campo elétrico (as linhas tracejadas), $(\sin(\omega t) - 0,4 \sin(\omega t)^2)$ para a linha sólida do primeiro caso e $(1,25 \sin(\omega t) - \sin(\omega t)^3)$ para a linha sólida do segundo caso.

Suporemos um campo elétrico e uma polarização dados por:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{E}(\omega_n) e^{i(\vec{k}\cdot\vec{r} - \omega_n t)} + c.c. \quad (3.2)$$

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{P}(\omega_n) e^{i(\vec{k}\cdot\vec{r} - \omega_n t)} + c.c., \quad (3.3)$$

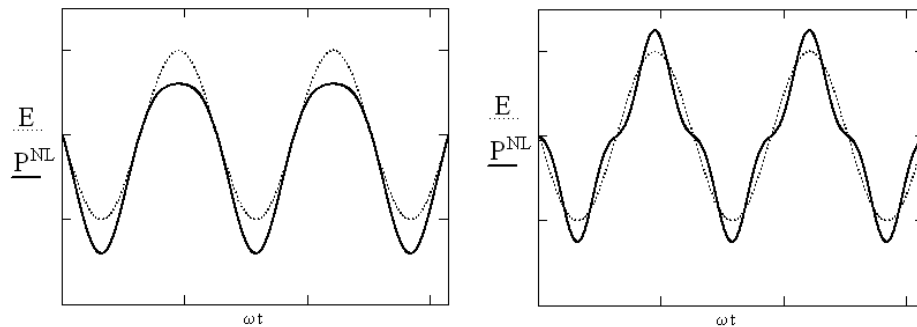


Figura 3.1: *Dois exemplos que ilustram o caso em que as polarizações (linhas sólidas), não são respostas lineares dos campos aplicados em um meio (linhas tracejadas). Suponha que o campo elétrico incidente é polarizado e o vetor polarização é paralelo ao campo incidente. Aqui o eixo horizontal é o tempo e o eixo vertical é a polarização (linha sólida) e o campo elétrico aplicado (linha tracejada). A primeira curva sólida foi obtida esboçando a função $(\sin(\omega t) - 0,4 \sin(\omega t)^2)$ e a segunda curva sólida foi obtida de $(1,25 \sin(\omega t) - \sin(\omega t)^3)$, as curvas tracejadas foram obtidas de $(\sin(\omega t))$ [16].*

ou seja, uma expansão em ondas planas com amplitudes dadas por $E(\omega)$ e $P(\omega)$.

Considere o caso em que temos somente o termo da susceptibilidade não-linear de segunda ordem $\chi^{(2)}$, na expressão (3.1). Ao substituírmos o campo (3.2) em (3.1) e compararmos o resultado com (3.3), obtemos:

$$P_i(\omega_n + \omega_m) = \sum_{jk} \sum_{(nm)} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n + \omega_m, \omega_n, \omega_m) E_j(\omega_n) E_k(\omega_m). \quad (3.4)$$

O tensor susceptibilidade não-linear de segunda ordem é definido como a constante de proporcionalidade que relaciona a amplitude da polarização não-linear e o produto das amplitudes dos campos de entrada.

3.2 Susceptibilidade não-linear efetiva

Definiremos uma notação contraída para representar a matriz susceptibilidade não-linear de segunda ordem,

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}. \quad (3.5)$$

Assim,

$$P_i(\omega_n + \omega_m) = \sum_{jk} \sum_{(mn)} 2d_{ijk} E_j(\omega_n) E_k(\omega_m), \quad (3.6)$$

ou seja,

$$d_{ijk} = \begin{pmatrix} d_{xxx} & d_{xyy} & d_{xzz} & (d_{xyz} + d_{xzy}) & (d_{xxz} + d_{xzx}) & (d_{xxy} + d_{xyx}) \\ d_{yxx} & d_{yyy} & d_{yzz} & (d_{yyz} + d_{yzy}) & (d_{yxz} + d_{yzx}) & (d_{yxy} + d_{yyx}) \\ d_{zxx} & d_{zyy} & d_{zzz} & (d_{zyz} + d_{zzy}) & (d_{zxx} + d_{zxx}) & (d_{zxy} + d_{zyx}) \end{pmatrix}. \quad (3.7)$$

Usando a seguinte notação:

jk	xx	yy	zz	yz,zy	zx,xz	xy,yx
1	1	2	3	4	5	6

(3.8)

podemos reescrever a matriz de d_{ijk} , da seguinte forma:

$$d_{il} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix}. \quad (3.9)$$

Podemos escrever a polarização não-linear que gera a soma de frequência como:

$$\begin{bmatrix} P_x(\omega_3) \\ P_y(\omega_3) \\ P_z(\omega_3) \end{bmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \times \begin{bmatrix} E_x(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_z(\omega_1)E_z(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_y(\omega_2) + E_y(\omega_1)E_x(\omega_2) \end{bmatrix}. \quad (3.10)$$

Finalmente podemos explorar simetrias do meio não-linear e escolher direções específicas do campo incidente de forma que a relação entre o campo incidente e a polarização possa ser dada por um valor denominado susceptibilidade efetiva d_{eff} , com a seguinte forma:

$$P(\omega_3) = 4d_{eff}E(\omega_1)E(\omega_2). \quad (3.11)$$

3.3 Mistura de Três Ondas

3.3.1 Mistura de três ondas

Novamente usaremos a equação da onda eletromagnética no meio material (2.7), deduzida na seção 2.1, para um meio dielétrico, com $\vec{J} = 0$,

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}, \quad (3.12)$$

e usaremos uma polarização não-linear dada pela seguinte expressão:

$$\vec{P} = \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{NL}, \quad (3.13)$$

onde $\vec{P}^{(1)}$ é o termo linear da polarização e \vec{P}^{NL} é a contribuição não-linear da polarização do meio material

Os campos e as polarizações envolvidos no processo são expressos pelas seguintes equações:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{E}_n(\vec{r}) e^{-i\omega_n t} + c.c., \quad (3.14)$$

$$\vec{P}^{NL}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{P}_n^{NL}(\vec{r}) e^{-i\omega_n t} + c.c., \quad (3.15)$$

onde as amplitudes $\vec{E}_n(\vec{r})$ e $\vec{P}_n^{NL}(\vec{r})$ têm uma dependência harmônica da forma $e^{i\vec{k}_n \cdot \vec{r}}$.

Substituindo a expressão (3.13) na equação da onda eletromagnética (3.12), obtemos

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) + \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}^{(1)}) = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2}. \quad (3.16)$$

Usando $\varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}^{(1)} = \epsilon^{(1)} \vec{E}^{(1)}$, onde $\epsilon^{(1)}$ é o tensor permissividade elétrica de primeira ordem, temos:

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) + \mu_0 \epsilon^{(1)} \frac{\partial^2 \vec{E}^{(1)}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2}. \quad (3.17)$$

Consideremos o fenômeno denominado mistura de três ondas (Fig. 3.2), onde dois campos de entrada propagam-se na direção z e estes são combinados em um campo resultante, conservando energia

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2, \quad (3.18)$$

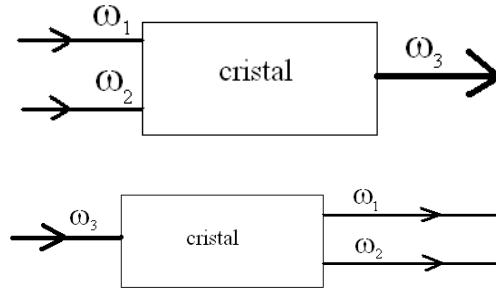


Figura 3.2: Esquema representando o fenômeno de soma de frequências (dois feixes incidentes em um cristal não-linear, com frequências ω_1 e ω_2 , originam um terceiro feixe com frequência $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$) e o fenômeno de conversão paramétrica descendente (um campo com frequência $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ origina a dois outros campos com frequências ω_1 e ω_2).

além do caso em que uma onda com frequência ω_3 é convertida em duas outras ondas com frequência ω_1 e ω_2 , também conservando energia. Sendo a amplitude deste campo resultante dada por:

$$E_3(z, t) = A_3 e^{i(k_3 z - \omega_3 t)} + c.c., \quad (3.19)$$

e a polarização não-linear proporcional aos dois campos incidentes do tipo $E_i = A_i e^{i(k_i z - \omega_i t)}$, $i = 1, 2$, obtemos:

$$P^{NL} = 4dE_1 E_2 = 4dA_1 A_2 e^{i(k_1 + k_2)z} e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t}, \quad (3.20)$$

onde d é a susceptibilidade não-linear efetiva de segunda ordem.

Usando a expressão da polarização acima (3.20) e a conservação da energia (3.18) em (3.17), obtemos:

$$\left[\frac{\partial^2 A_3}{\partial z^2} + 2ik_3 \frac{\partial A_3}{\partial z} - k_3^2 A_3 + \mu_0 \epsilon^{(1)} A_3 \omega_3^2 \right] e^{i(k_3 z - \omega_3 t)} + c.c. \quad (3.21)$$

$$= -4\mu_0 \omega_3^2 d A_1 A_2 e^{i[(k_1 + k_2)z - \omega_3 t]} + c.c.. \quad (3.22)$$

Como

$$k_3^2 = \mu_0 \epsilon^{(1)}(\omega_3) \omega_3^2, \quad (3.23)$$

temos a seguinte equação diferencial relacionando a amplitude do campo resultante A_3 com as amplitudes dos campos incidentes A_1 e A_2 :

$$\left[\frac{\partial^2 A_3}{\partial z^2} + 2ik_3 \frac{\partial A_3}{\partial z} \right] e^{ik_3 z} + c.c. = -4\mu_0 \omega_3^2 d A_1 A_2 e^{i(k_1 + k_2)z} + c.c.. \quad (3.24)$$

Caso tenhamos $A_1 = 0$ e ou $A_2 = 0$, temos teoria quântica obrigatótiamente, pois temos geração de A_3 do vácuo. Considerando uma variação lenta da amplitude do campo resultante durante a propagação no meio, de forma que

$$\frac{\partial^2 A_3}{\partial z^2} \ll k_3 \frac{\partial A_3}{\partial z}, \quad (3.25)$$

obtemos de (3.24):

$$\frac{\partial A_3}{\partial z} = \frac{2i\mu_0 d\omega_3^2}{k_3} A_1 A_2 e^{i(k_1+k_2-k_3)z}. \quad (3.26)$$

Definindo

$$\Delta k = k_1 + k_2 - k_3, \quad (3.27)$$

podemos escrever expressões semelhantes para as outras amplitudes do campo, ou seja:

$$\frac{\partial A_1}{\partial z} = \frac{2i\mu_0 d\omega_1^2}{k_1} A_3 A_2 e^{i(\Delta k)z}, \quad (3.28)$$

$$\frac{\partial A_2}{\partial z} = \frac{2i\mu_0 d\omega_2^2}{k_2} A_1 A_3 e^{i(\Delta k)z}. \quad (3.29)$$

Note que de (3.28) e (3.29), vemos que, se $A_1 = 0$ temos $A_2 = 0$. A amplitude do campo resultante A_3 é dada por:

$$A_3 = \frac{2i\mu_0 d\omega_3^2}{k_3} A_1 A_2 \int_0^L e^{i\Delta k z} dz = \frac{2i\mu_0 d\omega_3^2}{k_3} A_1 A_2 \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k} \quad (3.30)$$

e a intensidade dada por:

$$I_3 = |A_3|^2 = \frac{4\mu_0^2 d^2 \omega_3^4}{|k_3|^2} |A_1 A_2|^2 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2}. \quad (3.31)$$

onde L é o comprimento linear do cristal.

Observe que a intensidade do campo resultante é fortemente dependente do comprimento do cristal pela expressão, $L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2}$. A função $\frac{\sin(x)}{x}$ é comumente denominada função sinc(x), seno cardinal:

$$\text{sinc}(x) = \frac{\sin(x)}{x}. \quad (3.32)$$

A função sinc $(\frac{\Delta k L}{2})$ em função de L está representada na Fig. 3.3.

Então o número adimensional [114] $\Delta k L$ determina a defasagem entre os feixes incidentes e o feixe gerado após esses se propagarem uma distância no comprimento L_0 . Note que após um certo comprimento, a intensidade de geração da soma de frequências vai a zero rapidamente, Fig. 3.3, chegando a zero em $L = 2\pi/\Delta k$. Somente para comprimentos menores que $2\pi/\Delta k$, temos geração da soma de frequências com valor significativo.

Podemos definir um comprimento de coerência, onde ocorre o primeiro mínimo para intensidade do campo,

$$L_c = \frac{2\pi}{\Delta k}. \quad (3.33)$$

Se Δk é zero, L_c é infinito e a geração da soma de frequências cresce com o quadrado do comprimento do cristal. No entanto, Δk naturalmente é finito e L_c é muito pequeno (dezenas de micrômetros) [114]. É necessário, portanto, um método para se obter o casamento de fases, $\Delta k = 0$.

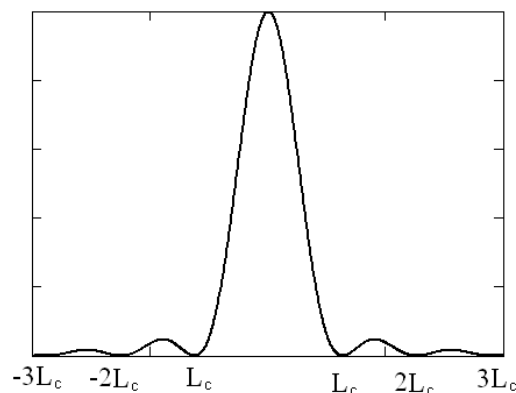


Figura 3.3: Dependência da função seno cardinal do efeito não-linear com o comprimento do cristal

Quando tratamos a conversão paramétrica descendente (efeito em que um campo incidente dá origem a dois outros com frequências menores e conservando energia (Fig. 3.2)), usamos interações envolvendo a susceptibilidade não-linear de segunda ordem $\chi^{(2)}$ e a intensidade de geração é semelhante ao caso da soma de frequências (3.31), ou seja, tem uma dependência intrínseca com o comprimento do cristal, dada pela função seno cardinal sinc. A conversão paramétrica será objeto de estudo da secção 4.2

3.3.2 O casamento de fase

Na seção anterior vimos uma forte relação entre a intensidade do campo gerado e o comprimento do cristal, conforme mostrado na Fig. 3.4. Vemos

que essa intensidade pode ser escrita como:

$$I_3 = I_{max}L^2 \frac{\sin^2(\Delta kL/2)}{(\Delta kL/2)^2}. \quad (3.34)$$

O casamento de fase é uma técnica utilizada para levar a zero o argumento da função seno cardinal, sinc, presente na intensidade do campo gerado, $\Delta k = 0$ [16]. Fisicamente, significa casar as fases das ondas incidentes e a onda gerada dentro do meio não-linear.

Em princípio, é possível avaliar o casamento de fase usando a condição de dispersão anômala, que é o decrescimento do índice de refração com o aumento da frequência, que ocorre próximo à frequência de ressonância. No entanto, o procedimento mais comum é usar a birrefringência dos cristais. Como dito antes, seção 2.2.2, um meio é birrefringente quando o seu índice de refração depende da direção de polarização do campo incidente. Nem todos os cristais mostram birrefringência, cristais isotrópicos, por exemplo, não são birrefringentes.

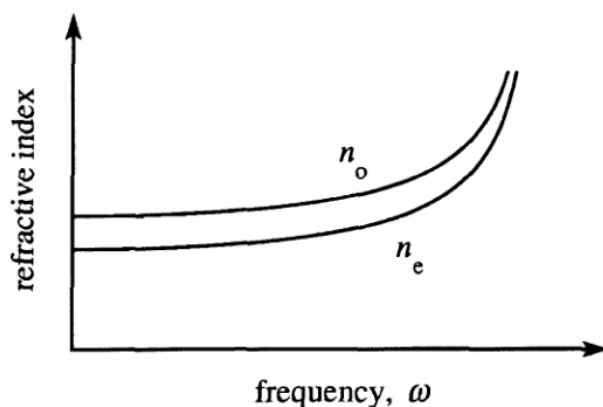


Figura 3.4: *Curva de dispersão de um cristal uniaxial negativo. Para o caso oposto, um cristal positivo, temos o índice de refração extraordinário n_e maior que o índice de refração ordinário n_o [16].*

Para se obter o casamento de fase, da soma de frequências, usando a birrefringência do cristal, a onda com frequência maior $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ deve estar polarizada na direção com menor índice de refração. Para o caso de um cristal uniaxial negativo, mostrado na Fig. 3.4, esta escolha corresponde à polarização extraordinária. Na Fig. 3.5, mostramos a dependência do índice de refração dos cristais da família KTP com o comprimento de onda [17]. Há duas escolhas possíveis para as polarizações das frequências menores. Midwinter e Warner (1965), definiram como casamento de fase Tipo I, a

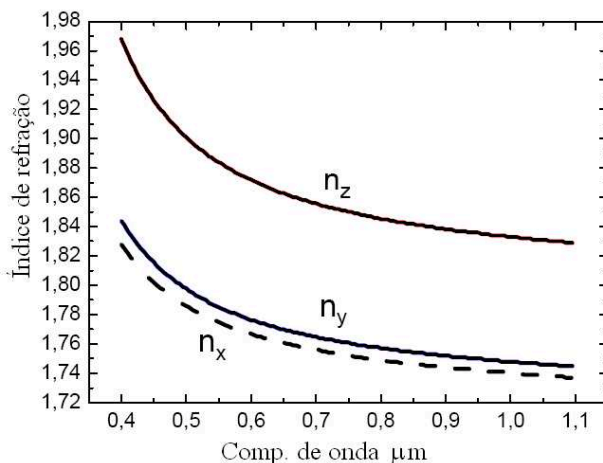


Figura 3.5: Curva de dispersão dos cristais do grupo KTP, onde n_x , n_y e n_z são os índices de refração nas direções x , y e z , respectivamente, em função do comprimento de onda [17].

escolha em que as frequências menores têm a mesma polarização e de Tipo II, o caso em que as polarizações são ortogonais. As possibilidades estão resumidas na Tabela 3.35.

Cristal Uniaxial	Tipo-I	Tipo-II
Negativo ($n_o > n_e$)	$n_3^e \omega_3 = n_1^o \omega_1 + n_2^o \omega_2$	$n_3^e \omega_3 = n_1^e \omega_1 + n_2^o \omega_2$
Positivo ($n_o < n_e$)	$n_3^o \omega_3 = n_1^e \omega_1 + n_2^e \omega_2$	$n_3^o \omega_3 = n_1^o \omega_1 + n_2^e \omega_2$

(3.35)

É necessário um controle cuidadoso dos índices de refração para que se tenha a condição de casamento de fase ($\Delta k = 0$). Tipicamente, o casamento de fase é feito controlando o índice de refração por um dos seguintes procedimentos: sintonizando a temperatura ou o ângulo formado entre a direção do feixe incidente e o eixo óptico do cristal.

Sintonizando ângulo

Este método envolve uma orientação angular precisa do cristal com relação à direção de propagação da luz incidente. Tal descrição é mais simples de se entender em meios uniaxiais e a discussão, a seguir, se restringirá a este caso. Cristais uniaxiais são caracterizados por terem um único eixo óptico, como explicado na subseção 2.2.2. A luz polarizada perpendicularmente ao plano formado pela direção de propagação \vec{k} e o eixo óptico, é chamada ordinário. Tal luz experimenta um índice de refração n_o , chamado índice de refração

ordinário. Luz polarizada na direção do plano que contém o vetor de onda incidente \vec{k} e o eixo óptico, é extraordinária e experimenta um índice de refração extraordinário $n_e(\theta)$ que depende do ângulo θ (ângulo formado entre o eixo óptico e o vetor \vec{k}), de acordo com a relação abaixo (veja dedução da Eq. (2.29) na subseção 2.2.2) [16, 113]:

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\sin^2(\theta)}{\bar{n}_e^2} + \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2}, \quad (3.36)$$

onde \bar{n}_e é o valor principal do índice de refração extraordinário. Note que $n_e(\theta)$ é igual ao valor principal \bar{n}_e quando $\theta=90$ graus e igual a n_o quando $\theta=0$. O casamento de fase é feito escolhendo-se o valor de θ de forma que $n_e(\theta)$ satisfaça $\Delta k = 0$.

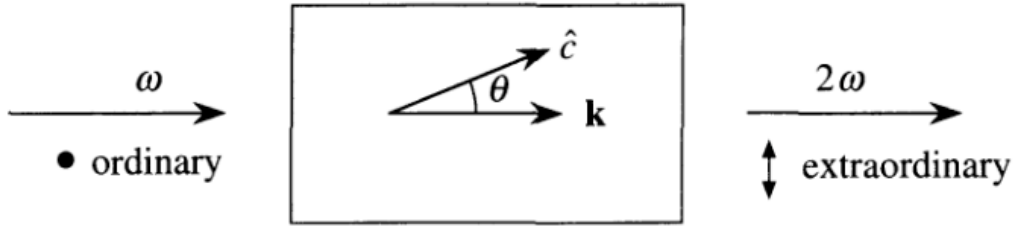


Figura 3.6: Geometria do ajuste por ângulo para geração de segundo harmônico (figura retirada da referência [16]).

Como ilustração do ajuste por ângulo, considere o caso tipo I e a geração de segundo harmônico óptico (soma de frequências onde $\omega_1 = \omega_2 = \omega$), como mostrado na Fig. 3.6. Sendo n_e menor que n_o , para um cristal uniaxial negativo, a onda fundamental propagará com índice ordinário e o segundo harmônico com índice extraordinário. A birrefringência deve compensar a dispersão do meio. Assim, quando $\Delta k = 0$, ou seja, $n_3\omega_3 = n_1\omega_1 + n_2\omega_2$, como $\omega_3 = 2\omega$ e $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, temos:

$$n_e(2\omega, \theta) = n_o(\omega) \quad (3.37)$$

ou usando (3.37) em (3.36), obtemos:

$$\frac{1}{n_o^2(\omega)} = \frac{\sin^2(\theta)}{\bar{n}_e(2\omega)^2} + \frac{\cos^2(\theta)}{n_o(2\omega)^2}. \quad (3.38)$$

Substituindo $\cos^2(\theta)$ por $1 - \sin^2(\theta)$ e resolvendo para $\sin^2(\theta)$, obtemos:

$$\sin^2(\theta) = \left(\frac{1}{n_o^2(\omega)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega)} \right) / \left(\frac{1}{\bar{n}_e^2(\omega)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega)} \right). \quad (3.39)$$

Esta equação mostra como o cristal deve ser orientado para satisfazer a condição de casamento de fase. Note que esta equação nem sempre tem solução. Por exemplo, pode haver combinações de índices de refração em que $\sin \theta$ é maior que um e logo, não existe θ tal que $\Delta k = 0$.

Sintonizando temperatura

Há uma grande desvantagem na sintonia por ângulo. Quando o ângulo entre o eixo óptico e o feixe incidente θ , vale 0 ou 90 graus, o vetor de Poynting \vec{S} e a direção de propagação \vec{k} não são paralelos para a onda extraordinária. Como resultado, as ondas ordinárias e extraordinárias divergem rapidamente uma da outra durante a propagação no cristal. Este desvio limita a sobreposição espacial das duas ondas e reduz a eficiência do processo de mistura de ondas.

Para alguns cristais, como o niobato de lítio, por exemplo, o índice de refração é fortemente dependente da temperatura. Como resultado, é possível obter as condições de casamento de fase ajustando a temperatura do meio, deixando o ângulo θ fixo em 90 graus por exemplo. O cristal KTP tem a dependência com a temperatura dada por [129]: $\frac{dn_x}{dT} = 1.1 \times 10^{-5}/^{\circ}C$, $\frac{dn_y}{dT} = 1.3 \times 10^{-5}/^{\circ}C$ e $\frac{dn_z}{dT} = 1.6 \times 10^{-5}/^{\circ}C$, quando $\lambda = 1064\text{nm}$. A direção z , aqui, é a direção em que o cristal é crescido.

Uma relação que dá a dependência entre derivada do índice de refração em relação à temperatura em função do comprimento de onda (em μm) para a família KTP é [17]:

$$\frac{dn_z}{dT}(\lambda) = \left(\frac{12.415}{\lambda^3} - \frac{44.414}{\lambda^2} + \frac{59.129}{\lambda} - 12.101 \right) (10^{-6}/^{\circ}C). \quad (3.40)$$

A Fig 3.7 mostra a dependência desta derivada com relação ao comprimento de onda em (μm).

3.4 Cristais não-lineares com inversão periódica de domínio

A discussão apresentada nesta seção foi baseada no estudo das referências [16–20].

3.4.1 O quase casamento de fase

Na seção 3.3 vimos que a intensidade de geração na mistura de três ondas está intimamente ligada com o comprimento do meio não-linear, via a

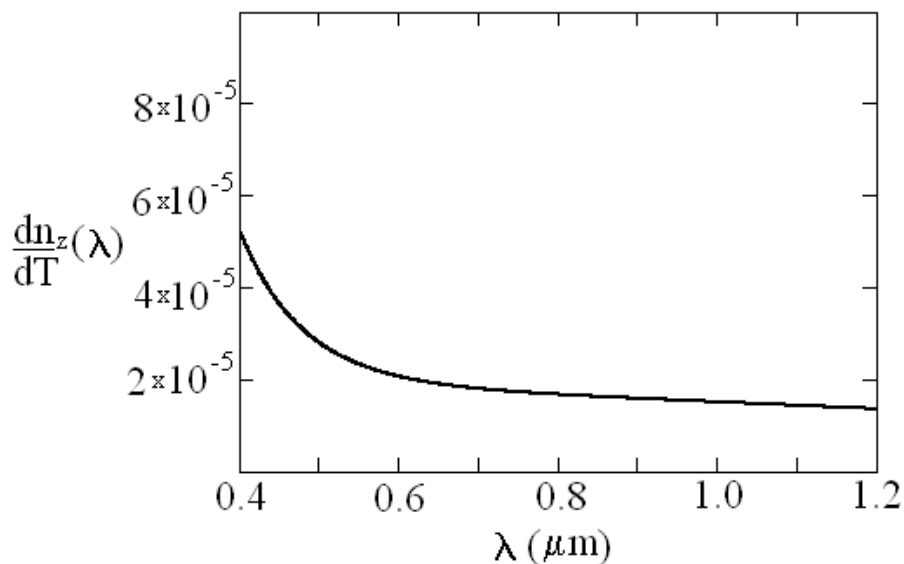


Figura 3.7: Curva mostrando a derivada do índice de refração com relação à Temperatura em função do comprimento de onda em (μm) para o cristal da família KTP, Eq. (3.40).

função seno cardinal, sinc. O casamento de fase é uma técnica que usa a birrefringência e a dispersão do meio não-linear para anular o argumento da função seno cardinal, sinc, e aumentar, assim, a eficiência do efeito não-linear. No entanto, há circunstâncias em que não se pode efetuar o casamento de fase. Quando o meio não tem birrefringência grande o bastante para compensar a dispersão dos índices de refração, por exemplo. Outra circunstância, sob a qual o casamento de fase usando birrefringência não é possível, é quando uma aplicação particular requer o uso do coeficiente não-linear d_{33} do tensor susceptibilidade não-linear. Nem sempre se pode acessar este coeficiente, pelo fato de estar associado a campos com mesma polarização. Assim, não se pode usar da birrefringência para compensar a dispersão.

Há uma técnica conhecida como quase casamento de fase que pode ser usada quando não se pode usar o casamento de fase normal. A idéia do quase casamento de fase está ilustrada na Fig. 3.8, que mostra um cristal não-linear com um único período (parte a) e um cristal não-linear com inversão periódica de domínios (parte b). De agora em diante, iremos nos referir a estes materiais com a seguinte sigla: Cristais com Inversões Periódicas de Domínios (CIPD). Um CIPD é fabricado de tal forma que possui uma estrutura em que o eixo óptico do material ferroelétrico é invertido periodi-

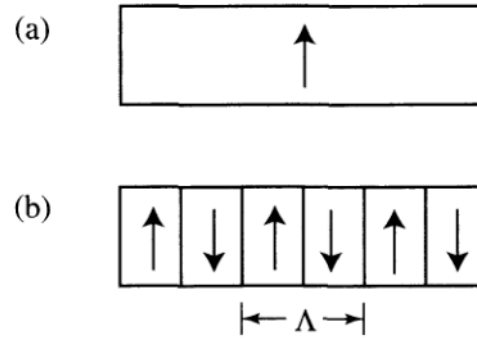


Figura 3.8: *Representação esquemática de um material gerador de segundo harmônico óptico (a) um cristal não-linear com um único período e (b) um material com inversão periódica de domínios em que o eixo cristalino positivo alterna de orientação com período Λ [16].*

amente. Uma inversão na orientação do eixo óptico tem como consequência a inversão do sinal da susceptibilidade efetiva d_{eff} . Esta alternância periódica pode compensar os casos em que o fator de casamento de fase Δk é não nulo. A natureza deste efeito está ilustrada na Fig. 3.9. Parte (a) da figura mostra um casamento de fase perfeito em um cristal não-linear comum. Neste caso a amplitude do campo cresce linearmente com a distância. A parte (c) ilustra o caso sem casamento de fases e a amplitude de geração oscila com a distância. O quase casamento de fase é ilustrado na parte (b) da figura. Supomos um período Λ de alternância do eixo óptico cristalino igual a duas vezes o comprimento de coerência L_{coh} da interação não-linear. A cada momento em que o campo gerado decresce, devido ao descasamento de fases, o sinal do coeficiente não-linear de acoplamento, a susceptibilidade efetiva, d_{eff} muda de sinal de forma que a amplitude do campo continue a crescer monotonicamente.

Uma descrição matemática do quase casamento de fase pode ser feita. $d(z)$ representará a dependência espacial do coeficiente não-linear de acoplamento. No exemplo mostrado na Fig. 3.8, onde $d(z)$ é a função retangular $\Theta(z)$ que pode ser representada por

$$d(z) = d_{eff}\Theta(z); \quad (3.41)$$

onde [111]:

$$\Theta(z) = \begin{cases} 1, & -\Lambda/2 \leq z < 0; \\ 0, & z=0; \\ -1, & 0 < z \leq \Lambda/2. \end{cases} \quad (3.42)$$

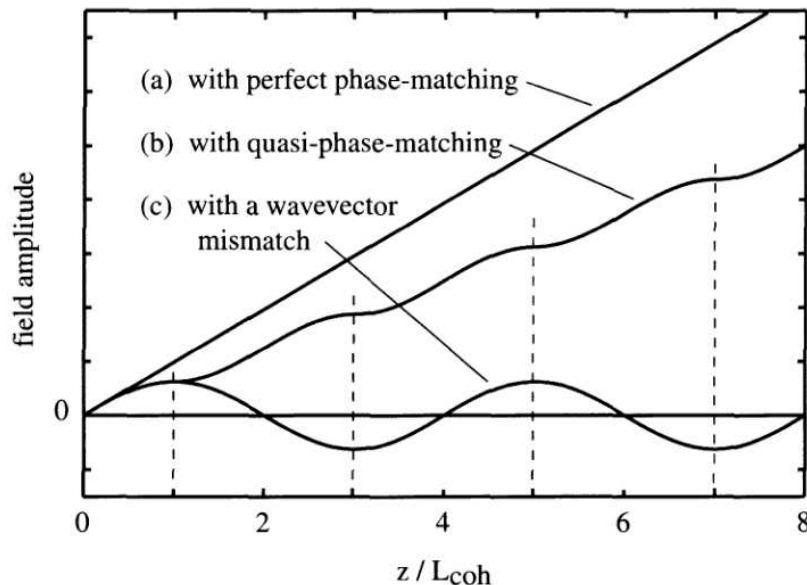


Figura 3.9: Comparação da variação espacial das amplitudes dos campos gerados em uma interação óptica não-linear em que três ondas são misturadas em diferentes condições: Curva (a) - supomos o casamento de fase perfeito, e como consequência a amplitude do campo é linear com a distância de propagação dentro do cristal. Curva (c) - supomos o termo de casamento de fases Δk é não nulo, assim a amplitude do campo gerado oscila com a distância. Curva (b) - supomos o quase casamento de fases, em que a orientação do eixo óptico cristalino está modulado com um período duas vezes o comprimento de coerência L_{coh} (Aqui [16] assumiu $L_{coh} = \pi/\Delta k$). Neste caso a amplitude cresce monotonicamente com a distância, mas este crescimento ainda é menor que o caso com casamento de fases perfeito (figura retirada da referência [16]).

Na Eq. (3.41), d_{eff} denota o coeficiente não-linear do material homogêneo. A descrição é semelhante ao do caso com casamento de fase; no entanto, devemos substituir d em (3.20) por $d(z)$. Uma representação útil para o coeficiente de acoplamento pode ser obtida por meio de uma expansão em série de Fourier

$$d(z) = d_{eff} \sum_{-\infty}^{\infty} G_m \exp(ik_m z), \quad (3.43)$$

onde $k_m = 2\pi m/\Lambda$ é o vetor grade associado ao m -ésimo coeficiente de Fourier de $d(z)$. Para a formação periódica mostrada na Eq. (3.42), G_m tem a

seguinte forma:

$$G_m = (2/m\pi) \sin(m\pi D/2). \quad (3.44)$$

onde D é o *Duty cycle*, $D = l/\Lambda$, onde l é a porção negativa da periodicidade do meio. Assim, a amplitude fundamental G_1 é dada por $G_1 = 2/\pi$, para uma escolha apropriada de D . Usando a equação de acoplamento deduzida na seção anterior (3.26), supondo que uma componente m , específica da série de Fourier de $d(z)$ domina o acoplamento:

$$\frac{\partial A_3}{\partial z} = \frac{2i\mu_0 d_Q \omega_3^2}{k_3} A_1 A_2 e^{i(k_1+k_2-k_3-k_m)z}, \quad (3.45)$$

onde d_Q é o coeficiente de acoplamento que depende da ordem m da série de Fourier de acordo com:

$$d_Q = d_{eff} G_m. \quad (3.46)$$

Definindo

$$\Delta k_Q = k_1 + k_2 - k_3 - k_m, \quad (3.47)$$

temos:

$$\frac{\partial A_3}{\partial z} = \frac{2i\mu_0 d_Q \omega_3^2}{k_3} A_1 A_2 e^{i\Delta k_Q z}. \quad (3.48)$$

Note que a equação de acoplamento (3.48) é semelhante ao caso com cristal homogêneo. Mas, aqui, o coeficiente de acoplamento e o fator de casamento de fase Δk estão modificados. Dado que a tendência de d_Q é diminuir com o aumento de m , Eq. (3.44), é desejável obter o quase casamento de fases usando a primeira ordem de interação ($m = 1$). Assim,

$$\Delta k_Q = k_1 + k_2 - k_3 - 2\pi/\Lambda \quad (3.49)$$

e

$$d_Q = (2/\pi) d_{eff}. \quad (3.50)$$

Destas duas equações vemos que o período ótimo, $\Delta k_Q = 0$, é dado por

$$\Lambda = 2L_{coh} = 2\pi/(k_1 + k_2 - k_3). \quad (3.51)$$

Um exemplo: $L_{coh} = 3.4\mu\text{m}$ para a geração do segundo harmônico óptico com comprimento de onda $1.06\mu\text{m}$ com o Niobato de Lítio. No nosso caso

temos um cristal da família KTP com L_{coh} igual a $5,76\mu\text{m}$ que gera segundo harmônico óptico do comprimento de onda $0.826\mu\text{m}$ para $0.413\mu\text{m}$ [127].

Um grande número de aproximações tem sido feito na fabricação de estruturas com quase casamento de fase. A idéia de quase casamento de fase foi proposta originalmente por Armstrong e colaboradores em 1962 [18], que sugeriram pedaços de meios não-lineares que giravam de um ângulo de 180 graus alternadamente. Mais recentemente, trabalhos envolvendo estruturas periódicas, têm mostrado eficientes aplicações na geração de segundo harmônico óptico com laser contínuo [2], além de serem fontes de fótons emaranhados [8].

Parte II

**FONTES DE ESTADOS COM
BIFÓTON.**

Introdução

Nesta segunda parte, apresentaremos fontes de estados de bifótons gerados por cristais não-lineares comuns e por cristais não-lineares com inversão periódica de domínio. É vasta a aplicação de estados bifótons em sistemas de informação e computação quântica [21–30], alguns processos sem análogos na computação clássica [31–40]. Estados bifotônicos gerados via conversão paramétrica descendente (CPD) são fontes importantes de emaranhamento e têm-se mostrado cruciais na compreensão do emaranhamento em geral [41–48]. Estados fotônicos representam uma fonte generosa em emaranhamento, podendo estar emaranhados em diferentes graus de liberdade. Estes podem estar emaranhados em polarização [49–51], tempo-frequência [52–54], momento angular orbital [55–61], momento transversal [120–125]. Cristais com inversão periódica de domínio fornecem uma fonte eficiente na produção de feixes via geração de segundo harmônico óptico [2–4, 6, 7], e mais recentemente, estes cristais têm sido utilizados para a produção de forma eficiente de fótons gêmeos [8–15].

O emaranhamento espacial apresenta-se como um recurso eficiente na produção de estados qudits, onde com o uso de fendas múltiplas pode-se criar estados emaranhados [62–74]. Para produção destes estados devemos verificar a ocorrência da transferência do espectro angular do feixe de bombeamento para o estado de dois fótons nas variáveis de momento transversal. A razão disso é que o estado de qudits emaranhado é produzido utilizando-se a conservação de momento transversal na geração do par de fótons. Essa conservação é obtida manipulando-se o espectro angular ou, o perfil transversal do feixe de bombeamento. Se a transferência do espectro angular do feixe de bombeamento ao estado de dois fótons nas variáveis de momento transversal ocorre, podemos modificar o perfil transversal do laser de tal modo que a conservação do momento transversal dos fótons gerados é quase perfeita. Assim, a transferência do espectro transversal e a formação da imagem quântica com estados de bifótons serão os objetos centrais de estudo desta parte II. Monken e colaboradores mostraram em [118] que o espectro angular do feixe de bombeamento é transferido para a função de correlação dos fótons na conversão paramétrica descendente. Desta forma, podemos controlar o emaranhamento espacial do estado bifotônico alterando o perfil do laser de bombeamento [123–125]. No capítulo 4, revisaremos a transferência do espectro angular para cristais não-lineares com um único período e apresentaremos resultados experimentais para o caso de um cristal β -Borato de Bário (BBO) com 5mm. No capítulo 5, mostraremos o cálculo da transferência do espectro angular, na conversão paramétrica descendente com cristais com quase-casamento de fase e apresentaremos resultados experimentais da trans-

ferência do espectro angular usando um cristal *Periodically Poled Potassium Titanyl Phosphate* (PPKTP) com 10 mm, nas mesmas condições experimentais do BBO (apresentado no capítulo 4). Comparações entre os dois casos serão feitas no capítulo 8, das discussões. Estes cálculos e medidas de transferência do espectro angular usando o cristal de PPKTP são contribuições originais desta tese.

Capítulo 4

Estados de Bifótons Gerados por Cristais Não-lineares

4.1 O Hamiltoniano de interação

O processo de conversão paramétrica descendente é caracterizado pela interação não-linear de um feixe de bombeamento com um cristal, em que o campo eletromagnético do feixe bombeador é convertido em dois outros campos, conservando momento linear e energia. A Fig. 4.1 mostra uma representação da conversão paramétrica descendente. Um feixe do laser de bombeamento, com vetor de onda \vec{k}_0 e frequência ω_0 , é convertido em dois outros feixes, com vetores de onda \vec{k}_1 e \vec{k}_2 e com frequências ω_1 e ω_2 , respectivamente. Os campos eletromagnéticos são gerados conservando energia ($\omega_0 = \omega_1 + \omega_2$) e momento ($\hbar\vec{k}_0 = \hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2$).

Os meios que apresentam este tipo de interação, são meios com susceptibilidade não-linear de segunda ordem, $\chi^{(2)}$, não nulo. De forma semelhante ao fenômeno de soma de frequências, a intensidade de geração na conversão paramétrica descendente é ditada por uma função seno cardinal da diferença entre os vetores de onda do feixe de bombeamento e do par de fótons gerados (Δk). Devemos obter condições de casamento de fase ($\Delta k = 0$), para que tenhamos uma intensidade considerável de fótons gerados. Conforme resumido na Tabela 3.35, temos duas maneiras distintas - tipo I e tipo II - de obtenção do casamento de fase via controle dos índices de refração do material. Na Fig. 4.2, temos a representação esquemática dos cones formados em cada tipo de geração do processo de conversão paramétrica descendente.

Cada cone representa um comprimento de onda e uma polarização específicas que ao viajar pelo cristal sofrem um desvio do feixe gerador, devido à birrefringência do meio. No caso do casamento de fase tipo I, onde os fótons

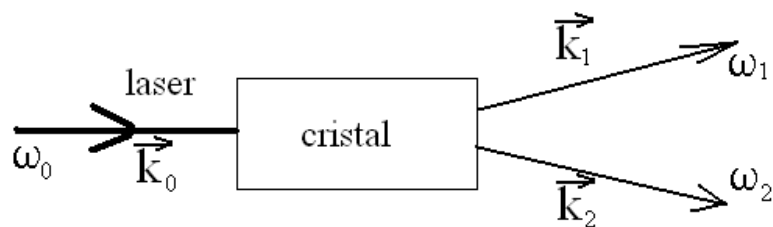


Figura 4.1: Esquema representando a conversão paramétrica descendente. Um campo do feixe de bombeamento (laser) com vetor de onda \vec{k}_0 e frequência ω_0 é convertido em dois outros campos, com vetores de onda \vec{k}_1 e \vec{k}_2 e com frequências ω_1 e ω_2 , respectivamente. Devido à conservação da energia, temos ($\omega_0 = \omega_1 + \omega_2$) e à conservação do momento, temos ($\hbar\vec{k}_0 = \hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2$).

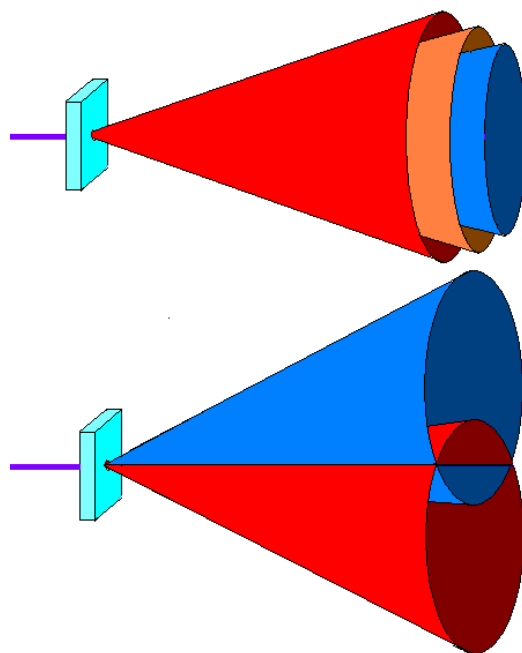


Figura 4.2: Esquema representando os cones de geração do processo da conversão paramétrica descendente. Cone de geração tipo I (acima) e cones de geração tipo II (abaixo).

gerados têm a mesma polarização, temos cones concêntricos e, no casamento de fase tipo II, onde os fótons gerados têm polarização oposta, temos dois cones deslocados do centro. Note que no caso de casamento de fase tipo II, diferentes cones implicam em diferentes polarizações. Observe tabela 3.35. A Fig. 4.3 representa a visão frontal dos cones de geração do processo de conversão paramétrica descendente:

a) Conversão paramétrica descendente tipo I, em que, ao detectarmos um fóton na posição A_1 no cone externo, o fóton gêmeo referente estará na posição A_2 do cone mais interno; O par de gêmeos B_1 e B_2 , referem-se a fótons detectados no mesmo cone de geração, ou seja, degenerados em frequência e comprimento de onda.

b) Conversão paramétrica descendente tipo II. Aqui, um fóton detectado na posição A_1 tem o seu par na posição A_2 ; o par de fótons gêmeos B_1 e B_2 , refere-se a fótons gêmeos localizados no cruzamento dos cones, ou seja, ao se detectar um fóton na posição B_1 , este pode ser originado do cone com polarização H ou V, e o mesmo ocorre com o fóton detectado na posição B_2 . Em muitos experimentos têm-se utilizado os fótons originários dos pontos B_1 e B_2 , por estarem em um estado emaranhados de polarização [58]. Os fótons gerados no processo de conversão paramétrica descendente são criados simultaneamente e, tradicionalmente, recebem o nome de fótons gêmeos; a nomenclatura, *signal*, (sinal) e *idler*, (auxiliar) também é empregado.

O tratamento mostrado abaixo e nas seções 4.2 e 4.3, é uma reprodução de notas de aulas de Carlos Monken [117] e da dissertação de mestrado de Rafael Thebaldi [119]. Na figura de interação, o operador Hamiltoniano que descreve a interação entre o feixe de bombeamento e o cristal não-linear no processo de conversão paramétrica descendente espontâneo é dado pela seguinte expressão [115]:

$$\begin{aligned} \hat{H}_I &= \sum_{i,j,k} \int_V d^3r \int_0^\infty \int_0^\infty dt' dt'' \chi_{ijk}^{(2)}(\vec{r}, t', t'') \hat{E}_i^{(+)}(\vec{r}, t) \times \\ &\times \hat{E}_j^{(-)}(\vec{r}, t - t') \hat{E}_k^{(-)}(\vec{r}, t - t'') + h.c.. \end{aligned} \quad (4.1)$$

$\chi_{ijk}^{(2)}(\vec{r}, t', t'')$ é a susceptibilidade efetiva de segunda ordem do meio e

$$\hat{E}_i(\vec{r}, t) = \hat{E}_i^{(+)}(\vec{r}, t) + \hat{E}_i^{(-)}(\vec{r}, t) \quad (4.2)$$

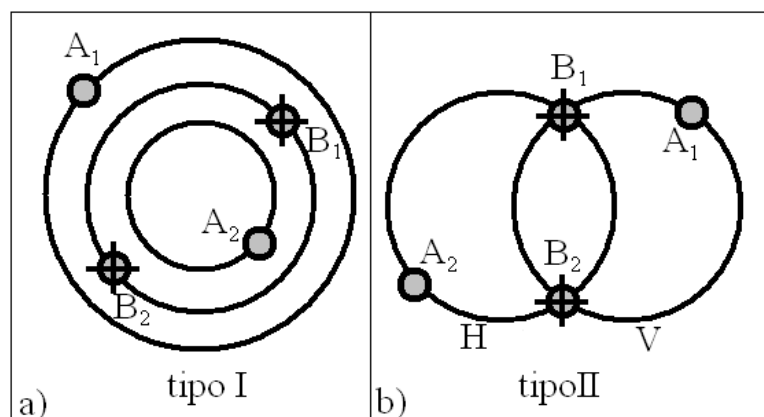


Figura 4.3: Esquema representando a visão frontal dos cones de geração no processo da conversão paramétrica descendente:

a) Conversão paramétrica descendente tipo I, em que, ao detectarmos um fóton na posição A_1 no cone externo, o fóton gêmeo referente a este estará na posição A_2 do cone mais interno. O par de gêmeos B_1 e B_2 , refere-se a fótons detectados no mesmo cone de geração, ou seja, degenerados em frequência e comprimento de onda.

b) Conversão paramétrica descendente tipo II. Aqui, um fóton detectado na posição A_1 tem o seu par na posição A_2 ; o par de fótons gêmeos B_1 e B_2 , refere-se a fótons gêmeos localizados no cruzamento dos cones, ou seja, ao se detectar um fóton na posição B_1 , este pode ser originário do cone com polarização H ou V , e o mesmo ocorre com o fóton detectado na posição B_2 .

com

$$\hat{E}_i^{(+)}(\vec{r}, t) = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \sum_{\vec{k}, s} (\vec{e}_{\vec{k}, s})_i l(\omega) \hat{a}_{\vec{k}, s} e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}, \quad (4.3)$$

$$l(\omega) = i \left(\frac{\hbar \omega(\vec{k}, s)}{2\epsilon_0 n^2(\vec{k}, s)} \right)^{1/2} \quad (4.4)$$

e

$$\hat{E}_i^{(-)}(\vec{r}, t) = \left(\hat{E}_i^{(+)}(\vec{r}, t) \right)^\dagger. \quad (4.5)$$

O vetor $\vec{e}_{\vec{k}, s}$ vetor unitário de polarização do campo s com vetor de onda \vec{k} ; os campos $\hat{E}_j^{(-)}(\vec{r}, t - t')$ e $\hat{E}_k^{(-)}(\vec{r}, t - t'')$ representam os campos gerados e $\hat{E}_i^{(+)}(\vec{r}, t)$ representa o campo de bombeamento.

Integraremos em todos os tempos t' e t'' ; somaremos as contribuições de todas as coordenadas cartesianas i, j e k do operador Hamiltoniano; aqui, Ω é uma constante relacionada com o volume de quantização do campo eletromagnético [116] e $n(\vec{k}, s)$ é o índice de refração do meio para um campo com vetor de onda \vec{k} e polarização s .

Inserindo as expansões dos campos no operador Hamiltoniano, obtemos

$$\begin{aligned} \hat{H}_I &= \sum_{i,j,k} \int_V d^3r \int_0^\infty \int_0^\infty dt' dt'' \chi_{ijk}^{(2)}(\vec{r}, t', t'') \hat{E}_i^{(+)}(\vec{r}, t) \times \\ &\times \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \left(\sum_{\vec{k}_1, s_1} (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* l(\omega_1) \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger e^{-i(\vec{k}_1 \cdot \vec{r} - \omega_1(t-t'))} \right) \times \\ &\times \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \left(\sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* l(\omega_2) \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger e^{-i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r} - \omega_2(t-t''))} \right) + h.c.. \quad (4.6) \end{aligned}$$

Definindo

$$\tilde{\chi}_{i,j,k}(\vec{r}, \omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \int_0^\infty \int_0^\infty dt' dt'' \chi_{ijk}^{(2)}(\vec{r}, t', t'') e^{-i(\omega_1 t' + \omega_2 t'')}, \quad (4.7)$$

temos

$$\begin{aligned} \hat{H}_I &= \frac{1}{\Omega} \sum_{i,j,k} \sum_{\vec{k}_1, s_1} \sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* l(\omega_1) l(\omega_2)^* \\ &\times \int_V d^3r \tilde{\chi}_{i,j,k}(\vec{r}, \omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) E_i^{(+)}(\vec{r}, t) e^{-i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}} \times \\ &\times \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger e^{i(\omega_1 + \omega_2)t} + h.c. \quad (4.8) \end{aligned}$$

Esta é a expressão do Hamiltoniano de interação entre um campo de bombeamento $E_i(\vec{r}, t)$ e um meio com susceptibilidade efetiva não-linear de segunda ordem dada por $\tilde{\chi}_{i,j,k}(\vec{r}, \omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2)$. Observe que esta expressão descreve tanto os casos com cristais não-lineares com um único período, como Beta Borato de Bário (BBO), quanto aqueles cristais com inversão periódica de domínio, como no caso do *Periodically Poled Potassium Titanyl Phosphate* (PPKTP). Para o BBO, temos a susceptibilidade efetiva constante espacialmente, assim, esta pode ser retirada da integração espacial. Mais adiante, trataremos o caso de geração de estados bifótons utilizando cristais com inversão periódica de domínio.

4.2 Estado gerado na conversão paramétrica descendente espontânea utilizando cristais não-lineares com um único período

Podemos obter o estado gerado no processo de conversão paramétrica descendente espontâneo, utilizando o operador evolução do Hamiltoniano descrito anteriormente para o caso em que a susceptibilidade não-linear é constante na propagação, ou seja,

$$|\Psi(t)\rangle = \exp\left[\frac{1}{i\hbar} \int_0^t \hat{H}_I(t') dt'\right] |\Psi(0)\rangle. \quad (4.9)$$

Considerando o caso em que o estado inicial é o vácuo, temos o seguinte estado:

$$|\Psi\rangle = |\text{vac}\rangle + \left[\frac{1}{i\hbar} \int_0^t \hat{H}_I(t') dt'\right] |\text{vac}\rangle + \frac{1}{2} \left[\frac{1}{i\hbar} \int_0^t \hat{H}_I(t') dt'\right]^2 |\text{vac}\rangle + \dots \quad (4.10)$$

Considerando a geração de estados com dois fótons em que o campo de bombeamento é monocromático, ou seja,

$$E_i(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}_0, s_0} l(\omega_0) (\vec{e}_{\vec{k}_0, s_0})_i \hat{a}_{\vec{k}_0, s_0} e^{i(\vec{k}_1 \cdot \vec{r} - \omega_0 t)}, \quad (4.11)$$

temos [116, 117]

$$\begin{aligned}
\frac{1}{i\hbar} \int_0^t \hat{H}_I(t') dt' &= \frac{1}{i\hbar} \frac{1}{\Omega^{3/2}} \sum_{i,j,k} \sum_{\vec{k}_1, s_1} \sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_0, s_0})_i (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* \\
&\times l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* l(\omega_0) \tilde{\chi}_{i,j,k}^{(2)} \hat{a}_{\vec{k}_0, s_0} \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger \\
&\times e^{-i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_0) \cdot \vec{r} / 2} \prod_{m=1}^3 \text{sinc}[(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_0)_m L_m / 2] \\
&\times e^{i(\omega_1 + \omega_2 - \omega_0)t/2} \text{sinc}[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_0)t/2]. \quad (4.12)
\end{aligned}$$

Algumas aproximações podem ser feitas na expressão Eq. (4.12), acima [117]:

- O bombeamento é um feixe contínuo e monocromático, e sua seção transversal está toda contida no cristal. Consideraremos a propagação na direção z positiva. O tempo de interação é considerado infinito, ou seja,

$$t \times \text{sinc}[(\omega_1 + \omega_2 - \omega_0)t/2] \rightarrow \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_0). \quad (4.13)$$

- Utilizamos filtros de frequência nos detectores de forma que $l(\omega_1)$ e $l(\omega_2)$ sejam constantes.
- Aproximaremos $\sum_{\vec{k}_i}$ por $\int d\vec{k}_i \delta(k_i - n_i(\vec{k}_i)\omega_i/c)$.
- Os operador $\hat{a}_{\vec{k}_0, s_0}$ por $v(\vec{k}_0)$, que é o espectro angular do feixe de bombeamento com vetor \vec{k}_0 .
- A informação sobre polarização será colocada no vetor de estado $|\vec{k}_i, s_i\rangle$.

Assim, podemos escrever os estado bifóton (com dois fótons) da seguinte forma:

$$|\Psi\rangle = \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 \Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2) |\vec{k}_1, s_1\rangle |\vec{k}_2, s_2\rangle, \quad (4.14)$$

onde

$$\begin{aligned}
\Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2) &= \int d\vec{k}_0 v(\vec{k}_0) l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* l(\omega_0) \tilde{\chi}_{i,j,k}^{(2)} \\
&\times e^{-i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_0)_z z / 2} \text{sinc}[(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_0)_z L_z / 2] \quad (4.15)
\end{aligned}$$

Aqui, $v(\vec{k}_0)$ é o espectro angular do feixe de bombeamento e $l(\omega_i)$ é constante devido a presença dos filtros de interferência centrados nas frequências ω_1 e ω_2 . O produtório reduz-se a apenas a direção z , devido ao fato de o feixe de bombeamento estar todo contido no cristal transversalmente, ou seja, podemos integrar $\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dL_x dL_y$ e as funções seno cardinais são dadas por deltas de Dirac.

4.3 Transferência do espectro angular com estados bifótons e cristais não-lineares com um único período

4.3.1 Teoria

A transferência do espectro angular foi vastamente explorada por Monken, Pádua e colaboradores em diversos trabalhos [118, 120–125]. A transferência do espectro angular permite-nos criar, de forma controlada, estados emaranhados espacialmente [122–124]. Apresentaremos, aqui, a transferência do espectro angular para estados bifótons gerados por um cristal BBO de 5 mm. A teoria mostrada aqui foi retirada das referências [117–119]. Nestes cálculos o campo elétrico do laser é superposto contínuo, embora o experimento com BBO, mostrado abaixo, tenha sido realizado com laser pulsado. No capítulo 5, mostramos o cálculo e medidas feitas para o cristal PPKTP, onde o feixe de bombeamento utilizado nos cálculos é pulsado. Posteriormente, apresentaremos os resultados da transferência do espectro angular para estados bifótons gerados por um PPKTP de 10mm, nas mesmas condições experimentais. Assim, poderemos comparar os dois casos.

Mais aproximações podem ser feitas na função da Eq. (4.15), mostrada acima [117, 118]. Definindo:

$$\vec{q} = k_x \hat{i} + k_y \hat{j} \quad (4.16)$$

$$\vec{\rho} = x \hat{i} + y \hat{j}, \quad (4.17)$$

podemos escrever:

$$\begin{aligned} \vec{k}_0 &= k_{0z} \hat{z} + \vec{q} \\ \vec{q} &= q_x \hat{i} + q_y \hat{j}, \end{aligned}$$

onde \vec{k}_0 é aproximadamente constante.

Escrevendo

$$\begin{aligned}\vec{k}_1 &= k_{1z}\hat{z} + \vec{q}_1, \\ \vec{q}_1 &= q_{1x}\hat{i} + q_{1y}\hat{j}, \\ \vec{k}_2 &= k_{2z}\hat{z} + \vec{q}_2, \\ \vec{q}_2 &= q_{2x}\hat{i} + q_{2y}\hat{j}.\end{aligned}$$

E definindo

$$\begin{aligned}q &= |\vec{q}_0|, \\ q_1 &= |\vec{q}_1|, \\ q_2 &= |\vec{q}_2|, \\ K_0^2 &= |\vec{k}_0|^2 = q^2 + k_{0z}^2, \\ K_1^2 &= |\vec{k}_1|^2 = q_1^2 + k_{1z}^2, \\ K_2^2 &= |\vec{k}_2|^2 = q_2^2 + k_{2z}^2.\end{aligned}$$

Podemos escrever

$$v(k_{0z}) = v(\vec{q})\delta(k_{0z} - \sqrt{K_0^2 - q^2}). \quad (4.18)$$

Assim, temos:

$$\begin{aligned}\Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2) &= \text{const} \times v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) \\ &\times \text{sinc} \left[\frac{1}{2} \left(\sqrt{K_1^2 - q_1^2} + \sqrt{K_2^2 - q_2^2} - \sqrt{K_0^2 - |q_1 + q_2|^2} \right) L_z \right].\end{aligned} \quad (4.19)$$

Recentemente um trabalho foi feito onde as propriedades de birrefringência do cristal são incluídos no cálculo [149].

Considerando

$$\sqrt{K_i^2 - q_i^2} = K_i - \frac{1}{2} \frac{q_i^2}{K_i} \quad (4.20)$$

e $K_0 \approx 2K_1 \approx 2K_2$, temos

$$\Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = \text{const} \times v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) \times \text{sinc} \left[\frac{L_z}{4K_0} |q_1 - q_2|^2 \right]. \quad (4.21)$$

Uma última aproximação a ser feita é considerar cristais finos, ou seja, que L_z é pequeno comparado com $1/|q_1|$ e $1/|q_2|$. Assim,

$$\Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = \text{const} \times v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2). \quad (4.22)$$

Na aproximação de cristal fino apenas as componentes transversais do momento linear dos fótons são conservadas e o espectro angular do feixe de bombeamento é transferido para o estado bifóton.

Para verificar o impacto do resultado acima na taxa de coincidências (contagens simultâneas dos fótons gerados no processo de conversão paramétrica descendente), avaliaremos a função correlação de quarta ordem, onde temos o módulo quadrado de dois campos, um campo para cada detector.

$$C(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \langle \Psi | E^{(-)}(\vec{r}_1) E^{(-)}(\vec{r}_2) E^{(+)}(\vec{r}_1) E^{(+)}(\vec{r}_2) | \Psi \rangle, \quad (4.23)$$

onde

$$\hat{E}^{(+)}(\vec{r}) = \int d\vec{q} a(\vec{q}) e^{i[\vec{q} \cdot \vec{\rho} + \sqrt{k^2 - \rho^2} z]}. \quad (4.24)$$

Como foi apresentado por Monken e colaboradores em [118], a taxa de coincidências será dada pela intensidade do perfil espacial do feixe de bombeamento, na posição de detecção Z_0 , ou seja,

$$C(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \text{const} \times |W(\vec{R}, Z_0)|^2, \quad (4.25)$$

e onde

$$\frac{1}{Z_0} = \frac{\vec{k}_1}{\vec{k}_0} \frac{1}{z_1} + \frac{\vec{k}_2}{\vec{k}_0} \frac{1}{z_2}, \quad (4.26)$$

$$\vec{R} = \frac{Z_0 \vec{k}_1}{z_1 \vec{k}_0} \vec{\rho}_1 + \frac{Z_0 \vec{k}_2}{z_2 \vec{k}_0} \vec{\rho}_2 = \frac{1}{\mu_1} \vec{\rho}_1 + \frac{1}{\mu_2} \vec{\rho}_2. \quad (4.27)$$

$|W(\vec{R}, Z_0)|^2$ é a intensidade transversal do campo elétrico do feixe de bombeamento na distância Z_0 , \vec{R} é uma média dos vetores transversais ρ_1 e ρ_2 , referente à posição transversal de cada detector, $\mu_1 = \frac{Z_0 \vec{k}_1}{z_1 \vec{k}_0}$, $\mu_2 = \frac{Z_0 \vec{k}_2}{z_2 \vec{k}_0}$, z_i é a posição longitudinal do detector i e ρ_i é a posição vertical do detector i . No caso degenerado ($k_1 = k_2 = k_0/2$) e equidistante ($z_1 = z_2$), temos Eq. (4.27) dada por

$$\vec{R} = \frac{1}{2}(\vec{\rho}_1 + \vec{\rho}_2). \quad (4.28)$$

4.3.2 Resultados experimentais

O aparato experimento está representado na Fig. 4.4. Montagens semelhantes a esta, serão usadas adiante. Descreveremos com maior detalhe

este aparato e faremos referências a esta com as devidas adaptações. Utilizamos um laser pulsado com modos travados de Titânio Safira (Ti:Sa) com comprimento de onda de 826nm, que fornece pulsos com 200 fs de largura e com uma taxa de repetição de 76 MHz. O sistema de geração de segundo harmônico óptico, composto por duas lentes L_3 e L_4 com $f=5\text{cm}$ e um cristal BBO com 2mm de espessura, a lente L_3 focaliza o feixe infravermelho no cristal BBO, onde ocorre geração de segundo harmônico óptico, em seguida, o feixe gerado neste processo é colimado pela lente L_4 ; Espelhos dicróicos DM_1 e DM_2 refletem pulso azul e transmitem o pulso infravermelho; os filtros azuis F_1 retiram o infravermelho restante do pulso (aqui usamos dois filtros para melhor eficiência); um sistema expensor de feixe composto por duas lentes e duas iris I_1 e I_2 melhoram a qualidade espacial e controlam a potência do feixe, as lentes trabalham como um telescópio aumentando o diâmetro do feixe. A primeira iris I_1 , seleciona uma parte circular do feixe e a segunda iris I_2 seleciona um diâmetro maior ou menor do feixe expandido fornecendo, assim, uma maior ou menor potência do feixe no cristal. O feixe é focalizado no cristal BBO tipo II por uma lente L_2 com $f=1\text{m}$, gerando um par de fótons com polarização ortogonal entre si; um espelho dicróico DM_3 reflete o pulso azul e transmite os fótons gerados; um filtro vermelho F_2 separa o pulso azul restante dos fótons gêmeos gerados; na posição SS coloca-se uma fenda simples com largura de $200\mu\text{m}$ para análise do perfil neste ponto; uma lente L_0 focaliza todo o campo transmitido pela fenda SS nos detectores D_1 e D_2 ; os detectores apresentam filtros passa banda (representado por f na Fig. 5.3) com largura de 40nm e centrados em 826nm; um divisor de feixes polarizador PBS separa os fótons gerados; as contagens recolhidas pelos detectores são analisadas por um sistema de contagem em coincidência com resolução de 1ns. Inicialmente variamos a fenda simples e medimos o perfil do feixe; em seguida inserimos a fenda dupla DS com largura $100\mu\text{m}$ e distância entre as fendas de $200\mu\text{m}$ no feixe de bombeamento e recolhemos o padrão de interferência do plano de detecção varrendo a fenda SS; e finalmente usamos a lente L_1 com $f=25\text{cm}$ para formar imagem da fenda dupla no plano de detecção.

Abaixo, na Fig. 4.5, temos o perfil transversal do laser no plano de detecção. Usamos um medidor de potência e varremos o perfil transversal do laser, no plano de detecção, usando uma fenda simples com $200\mu\text{m}$ de largura.

Na Fig. 4.6, vemos a transferência do espectro angular para estados com dois fótons e cristal BBO. Este gráfico foi obtido varrendo a fenda simples na posição SS do aparato. Lembrando que existe uma única lente focalizando todo o campo transmitido por SS nos detectores, ou seja, varrer esta fenda

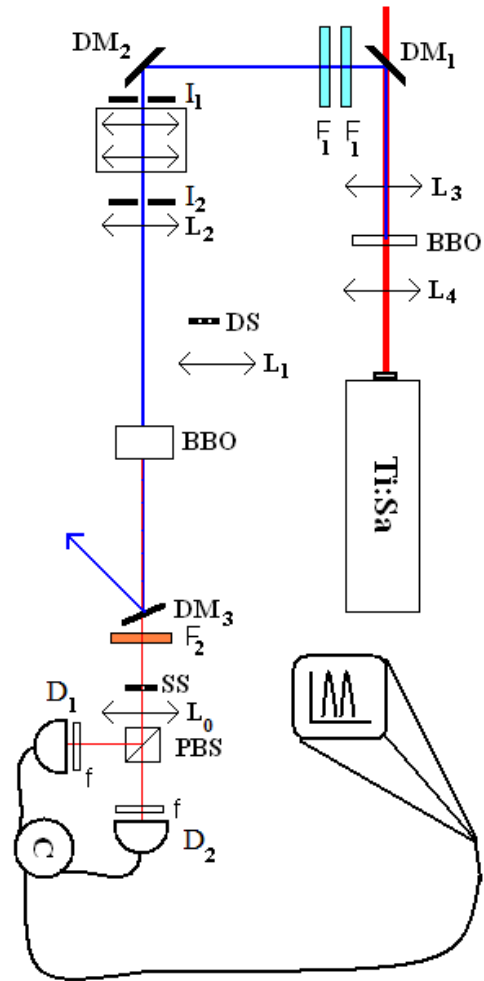


Figura 4.4: *Esquema experimental: laser pulsado de modos travados de titânio safira Ti:Sa; Sistema de geração de segundo harmônico óptico, duas lentes L_3 e L_4 com $f=5\text{cm}$ e um cristal BBO com 2mm de espessura; Espelhos dicróicos DM_1 DM_2 e DM_3 separam o pulso azul do infravermelho; os filtros azuis F_1 ; o sistema expensor de feixe composto por duas lentes e duas irises I_1 e I_2 melhoram a qualidade espacial e controlam a potência do feixe; o feixe é focalizado no cristal BBO tipo II de 5mm de espessura por uma lente L_2 com $f=1\text{m}$; usamos um filtro vermelho F_2 ; na posição SS colocamos uma fenda simples com largura de $200\mu\text{m}$; uma lente L_0 focaliza todo o campo transmitido pela fenda SS nos detectores D_1 e D_2 ; os detectores apresentam filtros passa banda f com largura de 40nm ; um divisor de feixes polarizador PBS separa os fótons gerados; as contagens recolhidas pelos detectores são analisadas por um sistema de contagens em coincidência com resolução de 1ns ; DS é uma fenda dupla com largura $100\mu\text{m}$ e distância entre as fendas de $200\mu\text{m}$; e a lente L_1 tem $f=25\text{cm}$.*

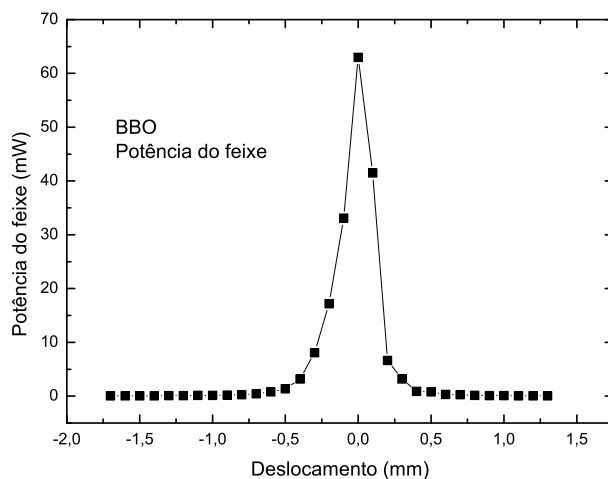


Figura 4.5: *Perfil transversal do feixe do laser bombeador do BBO, no plano de detecção, para a verificação da transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos.*

é equivalente a varrer os dois detectores simultaneamente. Assim devemos esperar uma igualdade entre o padrão dos fótons gêmeos e o padrão medido para o feixe.

Na Fig. 4.7, temos uma comparação entre o perfil do laser e a taxa de coincidências da transferência do espectro angular do feixe. Como pode ser visto nas Eqs. (4.14) e (4.22), a presença do espectro angular do laser no estado dos fótons gerados, faz com que o perfil transversal de coincidências no plano de detecção reproduza o perfil transversal do feixe de bombeamento neste plano Eq. (4.23) (quando varremos os dois detectores simultaneamente). Portanto, a superposição dos dois perfis na Fig. 4.7 é uma indicação experimental da transferência do espectro angular.

Inserimos, também, uma fenda dupla em uma posição anterior ao BBO de geração de pares e medimos o perfil do feixe difratado no plano de detecção. A Fig. 4.8, mostra a medida do perfil do laser, após inserirmos uma fenda dupla. A Fig. 4.9 mostra uma comparação entre o perfil do laser, medido via o uso de um medidor de potência, e a taxa de coincidências no mesmo plano após o cristal.

Em seguida, formamos a imagem de uma fenda dupla no plano de detecção, usando o feixe de bombeamento. A Fig. 4.10 mostra uma comparação entre o perfil do laser medido com o medidor de potência e a taxa de

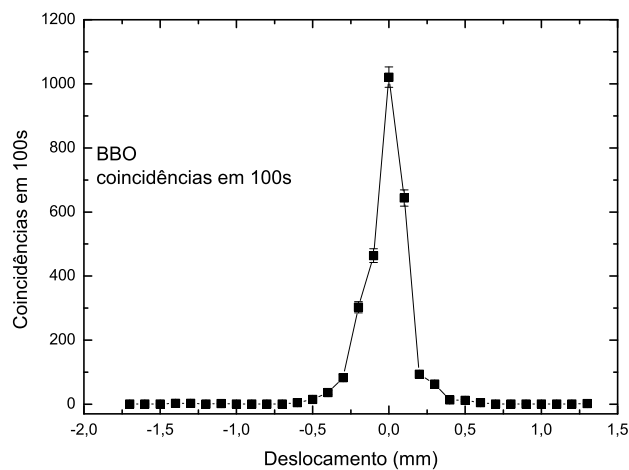


Figura 4.6: *Contagens em coincidências mostrando a transferência do espectro angular usando BBO.*

coincidências, ambos medidos no plano de formação de imagens e novamente varrer a fenda simples na posição SS é equivalente a varrer ambos detectores simultaneamente, ou seja, o observado no perfil do laser no plano de detecção deve ser o mesmo observado nas coincidências. Este experimento reproduz o observado por Monken e colaboradores em [118].

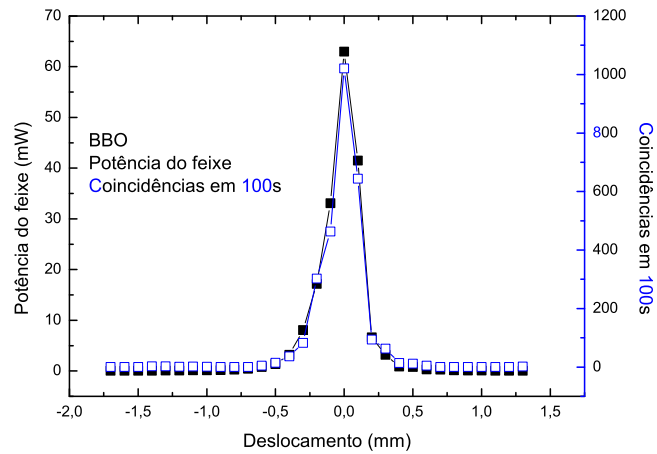


Figura 4.7: Comparação entre o Perfil do laser bombeador (simbolizado por quadrados cheios) e a taxa de coincidências (simbolizada por quadrados vazios) para mostrar a transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e BBO, ambos medidos no plano de detecção.

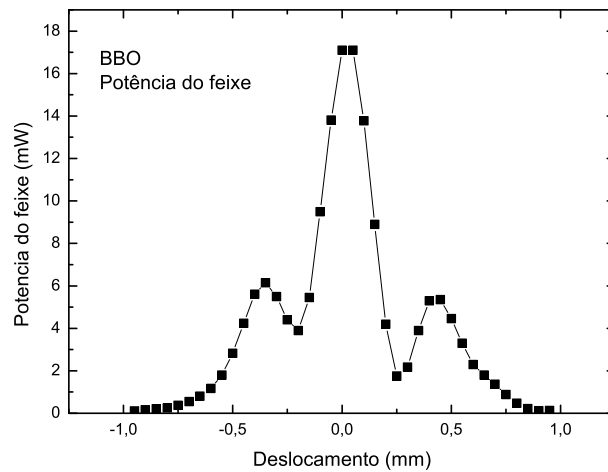


Figura 4.8: Perfil do laser bombeador do BBO na transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos - Padrão formado no plano de detecção por uma fenda dupla colocada no feixe.

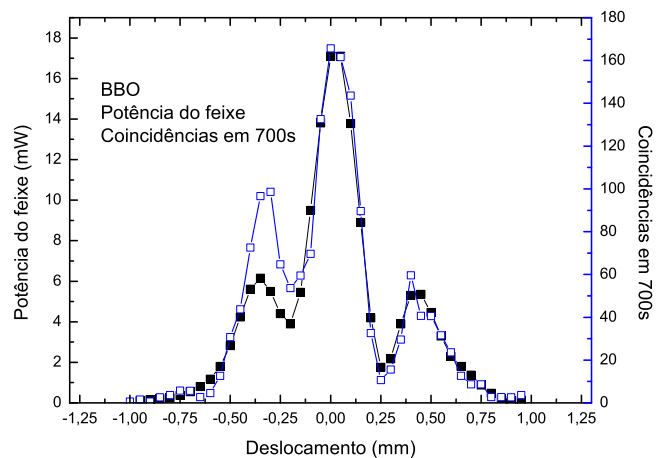


Figura 4.9: Comparação entre o Perfil do laser bombeador (simbolizado por quadrados cheios) e a taxa de coincidências (simbolizada por quadrados vazios) para mostrar a transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e BBO - Fenda dupla no feixe.

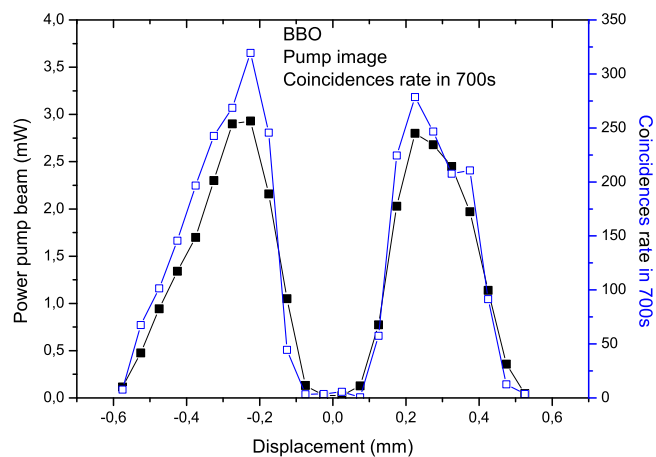


Figura 4.10: Comparação entre o Perfil do laser bombeador (simbolizado por quadrados cheios) e a taxa de coincidências (simbolizada por quadrados vazios) para mostrar a transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e BBO - Imagem de fenda dupla.

Capítulo 5

Estados de Bifótons Gerados por Cristais Não-lineares com Inversão Periódica de Domínio

No capítulo anterior, verificamos a transferência do espectro angular e a formação de imagem quântica usando cristais homogêneos, ou seja, cristais com um único domínio. Tal resultado foi observado por Monken e colaboradores em [118], uma cópia deste artigo pode ser encontrada no Anexo 1 desta tese. No presente capítulo apresentamos a teoria elaborada durante o doutorado que generaliza os resultados anteriores um cristal com inversão periódica de domínios - PPKTP. Os resultados do presente capítulo são inéditos e o artigo referente está em elaboração para publicação em breve.

5.1 O Hamiltoniano de interação

Faremos, abaixo, a descrição teórica da conversão paramétrica descendente tipo II para feixes de laser pulsados e cristais não-lineares com inversão periódica de domínio, por exemplo, PPKTP. Suporemos o mesmo Hamiltoniano de interação relatado anteriormente na Eq. (4.1), ou seja, temos o

seguinte Hamiltoniano, após as expansões dos campos:

$$\begin{aligned}
\hat{H}_I &= \sum_{i,j,k} \int_V d^3r \int_0^\infty \int_0^\infty dt' dt'' \chi_{ijk}^{(2)}(\vec{r}, t', t'') E_i^{(+)}(\vec{r}, t) \times \\
&\times \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \left(\sum_{\vec{k}_1, s_1} (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* l(\omega_1)^* \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger e^{-i(\vec{k}_1 \cdot \vec{r} - \omega_1(t-t'))} \right) \times \\
&\times \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \left(\sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* l(\omega_2)^* \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger e^{-i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r} - \omega_2(t-t''))} \right) + h.c. \quad (5.1)
\end{aligned}$$

Aproximaremos o envelope temporal do laser incidente no cristal por uma gaussiana e faremos uso do espectro angular do campo clássico pulsado $\tilde{E}_i(k_{0x}, k_{0y})$, assim temos:

$$E^{(+)}(\vec{r}, t) = e^{-\Gamma(t-zn_g/c)^2} e^{-i\omega_0 t} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_{0x} dk_{0y} \tilde{E}_i(k_{0x}, k_{0y}) e^{i(k_{0x}x + k_{0y}y + k_{0z}z)}, \quad (5.2)$$

onde Γ é proporcional ao inverso quadrado da duração temporal do pulso, n_g é o índice de refração da velocidade de grupo do meio, z é a direção de propagação do feixe laser e a relação entre k_{0x} , k_{0y} e k_{0z} é dada por

$$\begin{aligned}
k_{0z} &= \sqrt{k_0^2 - k_{0x}^2 - k_{0y}^2} \quad \text{para } k_0^2 - k_{0x}^2 - k_{0y}^2 \geq 0 \\
&= i\sqrt{k_{0x}^2 + k_{0y}^2 - k_0^2} \quad \text{para } k_0^2 - k_{0x}^2 - k_{0y}^2 \leq 0. \quad (5.3)
\end{aligned}$$

O espectro angular \tilde{E} pode ser calculado de $E(\vec{r})$ em $z = 0$ como

$$\tilde{E}_i(k_{0x}, k_{0y}) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dx dy E_i(x, y, 0) e^{-i(k_{0x}x + k_{0y}y)}. \quad (5.4)$$

Inserindo esta representação no operador Hamiltoniano, obtemos

$$\begin{aligned}
\hat{H}_I &= \frac{1}{2\Omega^{3/2}} \sum_{i,j,k} \sum_{\vec{k}_1, s_1} \sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_0, s_0})_i (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* \times \\
&\times e^{-i(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)t} e^{-\Gamma(t-zn_g/c)^2} \int_V d^3r e^{-i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}} \times \\
&\times \int_0^\infty \int_0^\infty dt' dt'' \chi_{ijk}^{(2)}(\vec{r}, t', t'') e^{-i(\omega_1 t' + \omega_2 t'')} \times \\
&\times \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_{0x} dk_{0y} \tilde{E}_i(k_{0x}, k_{0y}) e^{i(k_{0x}x + k_{0y}y + k_{0z}z)} \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger + h.c. \quad (5.5)
\end{aligned}$$

Definindo

$$\tilde{\chi}_{i,j,k}(\vec{r}, \omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \int_0^\infty \int_0^\infty dt' dt'' \chi_{ijk}^{(2)}(\vec{r}, t', t'') e^{-i(\omega_1 t' + \omega_2 t'')} \quad (5.6)$$

obtemos

$$\begin{aligned} \hat{H}_I &= \frac{1}{2\Omega^{3/2}} \sum_{i,j,k} \sum_{\vec{k}_1, s_1} \sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_0, s_0})_i (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* e^{-i(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)t} \times \\ &\times \int_V d^3r e^{-i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}} e^{-\Gamma(t - zn_g/c)^2} \tilde{\chi}_{i,j,k}(\vec{r}, \omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) \times \\ &\times \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_{0x} dk_{0y} \tilde{E}_i(k_{0x}, k_{0y}) e^{i(k_{0x}x + k_{0y}y + k_{0z}z)} \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger + h.c. \end{aligned} \quad (5.7)$$

Consideraremos a susceptibilidade não-linear de segunda ordem dada pela seguinte série de Fourier:

$$\tilde{\chi}_{i,j,k}(\vec{r}, \omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m f_{i,j,k}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) e^{i\vec{K}_m \cdot \vec{r}}, \quad (5.8)$$

onde \vec{K}_m está relacionado com o período de inversão dos domínios $\vec{K}_m = 2m\pi/\Lambda$ e $f_{i,j,k}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2)$ é uma função das frequências. Assim, o operador Hamiltoniano adquire a seguinte forma:

$$\begin{aligned} \hat{H}_I &= \frac{1}{2\Omega^{3/2}} \sum_{i,j,k} \sum_{\vec{k}_1, s_1} \sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_0, s_0})_i (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* e^{-i(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)t} \times \\ &\times \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m f_{i,j,k}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_{0x} dk_{0y} \tilde{E}_i(k_{0x}, k_{0y}) \times \\ &\times \int_V d^3r e^{-i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{K}_m) \cdot \vec{r}} e^{i(k_{0x}x + k_{0y}y + k_{0z}z)} e^{-\Gamma(t - zn_g/c)^2} \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger + h.c., \end{aligned} \quad (5.9)$$

ou equivalentemente:

$$\begin{aligned} \hat{H}_I &= \frac{1}{2\Omega^{3/2}} \sum_{i,j,k} \sum_{\vec{k}_1, s_1} \sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_0, s_0})_i (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* e^{-i(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)t} \times \\ &\times f_{i,j,k}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_{0x} dk_{0y} \tilde{E}_i(k_{0x}, k_{0y}) \times \\ &\times \int_V d^3r e^{-i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{K}_m - \vec{k}_0) \cdot \vec{r}} e^{-\Gamma(t - zn_g/c)^2} \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger + h.c.. \end{aligned} \quad (5.10)$$

Devemos avaliar a seguinte integral:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_V d^3r dk_{0x} dk_{0y} \tilde{E}_i(k_{0x}, k_{0y}) e^{-i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{K} - \vec{k}_0) \cdot \vec{r}} e^{-\Gamma(t - zn_g/c)^2}. \quad (5.11)$$

Definindo o vetor

$$\vec{\Delta k} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{K}_m - \vec{k}_0, \quad (5.12)$$

a integração no volume é dada por:

$$\begin{aligned} \int_V d^3r e^{-i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{K}_m - \vec{k}_0) \cdot \vec{r}} e^{-\Gamma(t - zn_g/c)^2} &= L_x \text{sinc}((\Delta k_x)L_x/2) L_y \text{sinc}((\Delta k_y)L_y/2) \\ &\times \int_0^{+L_z} dz e^{-\Gamma(t - zn_g/c)^2} e^{-i(\Delta k_z)z}, \end{aligned} \quad (5.13)$$

onde

$$\begin{aligned} \Delta k_x &= k_{1x} + k_{2x} - k_{0x}, \\ \Delta k_y &= k_{1y} + k_{2y} - k_{0y}, \\ \Delta k_z &= k_{1z} + k_{2z} - K_m - k_{0z}, \end{aligned} \quad (5.14)$$

e a posição $z = 0$ está localizada no início do cristal, onde a modulação no PPKTP ocorre somente na direção z . Na aproximação paraxial para o feixe de bombeamento, temos:

$$\Delta k_z = k_{1z} + k_{2z} - K_m - \sqrt{k_0^2 - k_{0x}^2 - k_{0y}^2} \approx k_{1z} + k_{2z} - K_m - k_0 + \frac{k_{0x}^2 + k_{0y}^2}{2k_0}. \quad (5.15)$$

Agora assumiremos que todo o perfil transversal do bombeamento está contido na face frontal do cristal. Neste caso, podemos estender as dimensões transversas do cristal para infinito, ou seja,

$$L_x L_y \text{sinc}((\Delta k_x)L_x/2) L_y \text{sinc}((\Delta k_y)L_y/2) \approx \delta((\Delta k_x)) \delta((\Delta k_y)). \quad (5.16)$$

Assim, o termo

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_{0x} dk_{0y} \tilde{E}_i(k_{0x}, k_{0y}) L_x \text{sinc}((\Delta k_x)L_x/2) L_y \text{sinc}((\Delta k_y)L_y/2) \\ \times \int_0^{+L_z} dz e^{-\Gamma(t - zn_g/c)^2} e^{-i(\Delta k_z)z} \end{aligned}$$

será dado por:

$$\tilde{E}_i(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) \int_0^{+L_z} dz e^{-\Gamma(t-zn_g/c)^2} e^{-i(\Delta k_z)z}, \quad (5.17)$$

onde $\Delta k_z = k_{1z} + k_{2z} - K_m - k_{0z}$ e $\vec{q}_j = k_{jx}\hat{x} + k_{jy}\hat{y}$, $j = 1, 2$ é a componente transversal do vetor de onda gerado.

Na aproximação paraxial para os feixes gerados, temos:

$$\begin{aligned} \Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) &= \frac{1}{c}(n_1^{s_1}\omega_1 + n_2^{s_2}\omega_2 - n_0\omega_0) - K_m - \\ &\quad - \left(c\frac{q_1^2}{2n_1^{s_1}\omega_1}\right) - \left(c\frac{q_2^2}{2n_2^{s_2}\omega_2}\right) + \left(c\frac{|\vec{q}_1 + \vec{q}_2|^2}{2n_0\omega_0}\right). \end{aligned} \quad (5.18)$$

onde

$$k_{jz} = \sqrt{k_j^2 - q_j^2} \approx k_j - \frac{1}{2} \frac{q_j^2}{k_j} = \frac{n_j\omega_j}{c} - \frac{1}{2} \frac{q_j^2 c}{n_j\omega_j}, j = 1, 2. \quad (5.19)$$

Como o material é birrefringente, n_j depende da polarização do campo eletromagnético e logo $n_j = n_j(s_j)$, onde s_j indica a polarização s_1 ou s_2 do campo gerado. Usando Eq. (5.17) na Eq. (5.10), o hamiltoniano fica:

$$\begin{aligned} \hat{H}_I &= \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m \frac{1}{2\Omega^{3/2}} \sum_{i,j,k} \sum_{\vec{k}_1, s_1} \sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_0, s_0})_i (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* \times \\ &\quad \times l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* e^{-i(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)t} \tilde{E}_i(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) f_{i,j,k}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) \times \\ &\quad \times \int_0^{+L_z} dz e^{-\Gamma(t-zn_g/c)^2} e^{-i(\Delta k_z)z} \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger + h.c., \end{aligned} \quad (5.20)$$

onde Δk_z é dada por (5.18).

5.2 Estado gerado na conversão paramétrica descendente espontânea utilizando cristais não-lineares com inversão periódica de domínio

Podemos avaliar o estado gerado no processo de conversão paramétrica descendente espontâneo, usando o seguinte propagador de estado [116]:

$$|\Psi(t)\rangle = \exp\left[\frac{1}{i\hbar} \int_0^t \hat{H}_I(t') dt'\right] |\Psi(0)\rangle. \quad (5.21)$$

Sendo o estado inicial o vácuo, temos o seguinte estado geral:

$$|\Psi\rangle = |\text{vac}\rangle + \left[\frac{1}{i\hbar} \int_0^t \hat{H}_I(t') dt' \right] |\text{vac}\rangle + \frac{1}{2} \left[\frac{1}{i\hbar} \int_0^t \hat{H}_I(t') dt' \right]^2 |\text{vac}\rangle + \dots \quad (5.22)$$

Considerando a geração de um par de fótons, devemos avaliar

$$\begin{aligned} \frac{1}{i\hbar} \int_0^T d\tau \hat{H}_I(\tau) &= \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m \frac{1}{i\hbar} \frac{1}{2\Omega^{3/2}} \sum_{i,j,k} \sum_{\vec{k}_1, s_1} \sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_0, s_0})_i (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* \times \\ &\times l(\omega_0) l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* f_{i,j,k}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) \tilde{E}_i(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) \times \\ &\times \int_0^{+L_z} dz e^{-i(\Delta k_z)z} \int_0^T d\tau e^{-i(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)\tau} e^{-\Gamma(\tau - zn_g/c)^2} \times \\ &\times \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger + h.c. \end{aligned} \quad (5.23)$$

O tempo T é o tempo de interação entre o feixe de bombeamento e o cristal não-linear. Para pulsos propagantes curtos e para uma posição z fixa, podemos integrar temporalmente de $-\infty$ a $+\infty$, já que a função que descreve a amplitude do campo elétrico do pulso é limitada temporalmente, centrada em z/v_g (v_g = velocidade de grupo), e com uma largura à meia altura igual a $\tau = 1/t_0^2$ (t_0 = é a largura temporal do pulso). A integral em todo τ pode ser resolvida por:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\Gamma(\tau - zn_g/c)^2} e^{-i(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)\tau} d\tau = e^{-in_g z(\Delta\omega/c)} e^{-\frac{(\Delta\omega)^2}{2\Gamma}}, \quad (5.24)$$

com

$$\Delta\omega = (\omega_0 - \omega_1 - \omega_2). \quad (5.25)$$

A integral no comprimento do cristal é:

$$\int_0^{+L_z} dz e^{-i(\Delta k_z)z} e^{-iz(n_g \Delta\omega/c)} = L_z e^{-i(\Delta k_z + n_g \Delta\omega/c)L_z/2} \text{sinc}((\Delta k_z + n_g \Delta\omega/c)L_z/2), \quad (5.26)$$

onde a função Δk_z é dada pela Eq. (5.18) e o termo $\Delta\omega$ é dado pela Eq. (5.25). Então,

$$\begin{aligned} \int_0^T d\tau \hat{H}_I(\tau) &= \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m \frac{1}{i\hbar} \frac{1}{2\Omega^{3/2}} L_z \sum_{i,j,k} \sum_{\vec{k}_1, s_1} \sum_{\vec{k}_2, s_2} (\vec{e}_{\vec{k}_0, s_0})_i (\vec{e}_{\vec{k}_1, s_1})_j^* (\vec{e}_{\vec{k}_2, s_2})_k^* \times \\ &\times l(\omega_0) l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* e^{-\frac{(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)^2}{4\Gamma}} f_{i,j,k}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) \times \\ &\times e^{-i(\Delta k_z + n_g \Delta\omega/c)L_z/2} \text{sinc}((\Delta k_z + n_g \Delta\omega/c)L_z/2) \\ &\times \tilde{E}_i(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) \hat{a}_{\vec{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_2}^\dagger + h.c.. \end{aligned} \quad (5.27)$$

O coeficiente não-linear de segunda ordem efetivo para o casamento de fase tipo II no cristal PPKTP é $d_{24} = \frac{1}{2}(\chi_{223} + \chi_{232}) = \chi_{223}$ para o caso de cristal cortado na direção z e propagação na direção x [17]. Em nossos cálculos, foi convencionado que a direção de propagação é a direção z, a direção do corte é a direção x e o feixe de bombeamento está polarizado na direção x. Assim, na conversão paramétrica descendente temos as seguintes transformações: $E_{k_0}^x \rightarrow E_{k_1}^y E_{k_2}^x$ ou $E_{k_1}^x E_{k_2}^y$. Adaptando as convenções de coordenadas e desprezando as dependências do coeficiente susceptibilidade com a frequência temos:

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{i\hbar} \int_0^T d\tau \hat{H}_I(\tau) = \\
& \frac{1}{i\hbar} L_z \frac{1}{\Omega^{3/2}} f_{2,2,3} l(\omega_0) \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m \sum_{\vec{k}_1} \sum_{\vec{k}_2} l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* e^{-\frac{(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)^2}{4\Gamma}} \times \\
& \times [\text{sinc}[(\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + n_g \Delta \omega / c) L_z / 2] \times \\
& \times e^{-i[\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + n_g \Delta \omega / c] L_z / 2} \tilde{E}_i(\vec{q}_1(s_y) + \vec{q}_2(s_x)) \hat{a}_{\vec{k}_1, s_y}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_x}^\dagger + \\
& + \text{sinc}[\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + (n_g \Delta \omega / c) L_z / 2] \times \\
& \times e^{-i[\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + (n_g \Delta \omega / c) L_z / 2]} \tilde{E}_i(\vec{q}_1(s_x) + \vec{q}_2(s_y)) \hat{a}_{\vec{k}_1, s_x}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}_2, s_y}^\dagger] + h.c., \tag{5.28}
\end{aligned}$$

onde $f_{2,2,3} = d_{2,4} = 3.64$ pm/V e s_x (s_y) significa a polarização na direção x (y) [17].

O estado bifóton gerado é dado por:

$$|\Psi\rangle = |\text{vac}\rangle + \frac{1}{i\hbar} \int_0^T d\tau \hat{H}_I(\tau) |\text{vac}\rangle \tag{5.29}$$

ou

$$\begin{aligned}
|\Psi\rangle = & |\text{vac}\rangle + \\
& \eta \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 [\Phi(k_{1x, s_y} + k_{2x, s_x}; k_{1y, s_y} + k_{2y, s_x}) |\vec{k}_1, s_y\rangle |\vec{k}_2, s_x\rangle + \\
& \Phi(k_{1x, s_x} + k_{2x, s_y}; k_{1y, s_x} + k_{2y, s_y}) |\vec{k}_1, s_x\rangle |\vec{k}_2, s_y\rangle], \tag{5.30}
\end{aligned}$$

onde

$$\begin{aligned}
\Phi(\vec{k}_1(s_y) + \vec{k}_2(s_x)) = & \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* e^{-\frac{(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)^2}{4\Gamma}} \times \\
& \times e^{-i[\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + n_g \Delta \omega / c] L_z / 2} \tilde{E}_i(\vec{q}_1(s_y) + \vec{q}_2(s_x)) \times \\
& \times \text{sinc}[(\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + n_g \Delta \omega / c) L_z / 2], \tag{5.31}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\Phi(\vec{k}_1(s_x) + \vec{k}_2(s_y)) &= \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m l(\omega_1)^* l(\omega_2)^* e^{-\frac{(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)^2}{4\Gamma}} \times \\
&\times e^{-i[\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + n_g \Delta\omega/c]L_z/2} \tilde{E}_i(\vec{q}_1(s_x) + \vec{q}_2(s_y)) \times \\
&\times \text{sinc}[(\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + n_g \Delta\omega/c)L_z/2].
\end{aligned} \tag{5.32}$$

e η^2 dá a probabilidade de geração de fótons.

5.3 Transferência do espectro angular com estados bifótons e cristais não-lineares periódicos

5.3.1 Teoria

O estado bifóton, Eq. (5.30) mostrado na secção 5.2 depende do espectro angular do feixe de bombeamento, $\tilde{E}_i(\vec{q}_1(s_i) + \vec{q}_2(s_j))$; de uma função $l(\omega_i)$; uma função gaussiana $e^{-\frac{(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)^2}{4\Gamma}}$ implicando na conservação da energia (a constante Γ é proporcional ao inverso do quadrado da largura temporal do pulso de bombeamento t_0); de uma fase global $e^{-i[\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + n_g \Delta\omega/c]L_z/2}$, por uma função seno cardinal (sinc), cujo argumento é dado pela Eq. (5.18) e Eq. (5.25), além do termo G_m que dá a amplitude contribuição periódica do meio [16].

Faremos uso de filtros de interferência gaussianos passa banda, na frente dos fotodetectores, de forma que podemos considerar a função $l(\omega_i)$ aproximadamente constante. Avaliaremos cada parte da função correlação levando em conta os valores experimentais típicos, que serão detalhados em seguida.

Função da periodicidade do meio G_m

Considerando um cristal com inversão periódica de domínio de $\Lambda = 11.525\mu\text{m}$, *Duty cycle* D (vide secção 3.4.1) de 52 à 55% e um comprimento efetivo de 96%, fabricado pela empresa *Raicol Crystals Ltd.*TM, a amplitude da periodicidade dada por [16]

$$G_m = \frac{\sin(m\pi D)}{m\pi D} \tag{5.33}$$

é igual à unidade e consideraremos o termo $K_m = \frac{2m\pi}{\Lambda}$ onde o termo predominante é dado pelo primeiro termo ($m = 1$) [16], ou seja,

$$K_1 = \frac{2\pi}{\Lambda}. \tag{5.34}$$

Filtro gaussiano de interferência

A função transmissão dos filtros de interferência colocados em frente aos detectores é dada pela seguinte equação:

$$f(\omega_1, \omega_2) = C_f \exp \left[-\frac{(\omega_1 - \omega_0/2)^2}{2\Delta\omega_f^2} \right] \exp \left[-\frac{(\omega_2 - \omega_0/2)^2}{2\Delta\omega_f^2} \right]. \quad (5.35)$$

A largura à meia altura da função transmissão do filtro de interferência é dada por: $\Delta\omega_f = 1,094 \times 10^{14}$ Hz. Usamos

$$\Delta\omega = \frac{2\pi c}{\lambda^2} \Delta\lambda, \quad (5.36)$$

onde $\Delta\lambda$ é a largura à meia altura do filtro em termos do comprimento de onda ($\Delta\lambda = 40$ nm) e c a velocidade da luz no vácuo.

Pulso do laser e conservação da energia

A dependência em frequência da largura temporal do laser pulsado e conservação da energia na mistura de ondas estão contidos na seguinte função gaussiana [1]:

$$E_p(\omega_1, \omega_2) = C_p \exp \left[-\frac{(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)^2}{2\Gamma} \right], \quad (5.37)$$

onde Γ é o inverso do quadrado da duração temporal do pulso $1/t_0^2$ e $t_0 = 200$ fs. A largura à meia altura do pulso laser é de $\Delta\omega_p = 1,177 \times 10^{15}$ Hz e $\omega_0 = 2,601 \times 10^{15}$ Hz.

O argumento da função seno cardinal (sinc)

Devemos avaliar a seguinte função:

$$\text{sinc}[(\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + n_g \Delta\omega/c)L_z/2], \quad (5.38)$$

onde $\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2)$, é dado pela Eq. (5.18).

Consultamos os dados do cristal PPKTP de 10mm fabricado pela empresa *Raicol Crystals Ltd.*TM para ajustar as expressões dos índices de refração deste cristal, índices presentes no argumento da função sinc:

$$\begin{aligned} \text{sinc}[(\Delta k_z(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) + n_g \Delta\omega/c)L_z/2] = \\ \text{sinc}[A(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2)L_z/2], \end{aligned} \quad (5.39)$$

onde definimos uma função argumento $A(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2)$, de forma que:

$$A(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2) = \frac{n_1^{s_1}\omega_1 + n_2^{s_2}\omega_2 - n_0\omega_0}{c} - c\frac{q_1^2}{2n_1^{s_1}\omega_1} - c\frac{q_2^2}{2n_2^{s_2}\omega_2} + c\frac{|\vec{q}_1 + \vec{q}_2|^2}{2n_0\omega_0} - 2\pi/\Lambda + \frac{n_g}{c}(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2). \quad (5.40)$$

Faremos uso das equações de Sellmeier para o cristal KTP, para obtermos os valores dos índices de refração do material, bem como o seu índice de refração de grupo n_g .

À temperatura de 20°C, os índices de refração de um cristal KTP são dadas por [129, 130]:

$$n_x(\lambda) = \sqrt{2.10468 + \frac{0.8934\lambda^2}{\lambda^2 - 0.04438} - 0.01036\lambda^2}, \quad (5.41)$$

$$n_y(\lambda) = \sqrt{2.14559 + \frac{0.87629\lambda^2}{\lambda^2 - 0.0485} - 0.01173\lambda^2}, \quad (5.42)$$

$$n_z(\lambda) = \sqrt{1.9446 + \frac{1.3617\lambda^2}{\lambda^2 - 0.047} - 0.01491\lambda^2}, \quad (5.43)$$

onde λ é o comprimento de onda dado em μm . As equações de Sellmeier acima referem-se a um cristal crescido na direção z. Adaptando as direções do cristal à nossa convenção de direções, temos: $n_1 = n_y$, $n_2 = n_z$ e $n_0 = n_y$, para uma configuração do casamento de fases tipo II e $n_1 = n_z$, $n_2 = n_y$ e $n_0 = n_y$, para outra configuração, ou seja, o feixe se propaga na direção x do fabricante. O cristal PPKTP, em questão, tem uma geração eficiente à temperatura de 40°C. Assim, é necessária uma correção nos valores dos índices de refração dados pela Equação de Sellmeier. A dependência do índice de refração com a temperatura é dada por [129]:

$$\frac{dn_1}{dT} = 1.3 \times 10^{-5}/^\circ\text{C}, \quad (5.44)$$

$$\frac{dn_2}{dT} = 1.6 \times 10^{-5}/^\circ\text{C}, \quad (5.45)$$

$$\frac{dn_0}{dT} = 1.1 \times 10^{-5}/^\circ\text{C}. \quad (5.46)$$

Podemos ajustar os índices à temperatura do experimento, 40°C:

$$n_1 = 1.7555, \quad (5.47)$$

$$n_2 = 1.8434, \quad (5.48)$$

$$n_0 = 1.8355, \quad (5.49)$$

para uma configuração do casamento de fases tipo II e

$$n_1 = 1.8434, \quad (5.50)$$

$$n_2 = 1.7555, \quad (5.51)$$

$$n_0 = 1.8355, \quad (5.52)$$

para a outra configuração do casamento de fases tipo II, n_1 e n_2 referem-se ao comprimento de onda de 826nm e o n_0 refere-se ao comprimento de onda do laser 413nm. A velocidade de grupo é obtida da seguinte expressão [110]:

$$\frac{1}{v_g} = \frac{1}{v} - \frac{\lambda}{c} \frac{dn}{d\lambda}, \quad (5.53)$$

λ é o comprimento de onda, v é a velocidade de fase e o valor de $\frac{dn}{d\lambda}$ é obtido das equações de Sellmeier, onde $n_g = c/v_g$. Obtivemos

$$n_g = 2.049, \quad (5.54)$$

para o comprimento de onda do feixe de bombeamento 413nm. Realizamos o experimento com um cristal, cujo período é $\Lambda = 11,525 \times 10^{-6}\text{m}$ e o comprimento efetivo é de $L_{eff} = 9,6\text{mm}$ (96% do comprimento real de 10mm).

O argumento $A(\omega_1, s_1, \vec{q}_1; \omega_2, s_2, \vec{q}_2)$ tem sua dependência transversal representada na Fig. 5.1. $\vec{k}_{1t} = \vec{q}_1$ e $\vec{k}_{2t} = \vec{q}_2$ são as componentes transversais dos fótons gerados. A saída do feixe no cristal tem um raio de cerca de 0,25mm e o cristal tem um comprimento total de 10mm. Considerando que a geração ocorra aproximadamente no centro do cristal, podemos inferir a componente transversal do vetor gerado da seguinte forma:

$$\vec{q}_1 = \vec{k}_1 \sin(\alpha_1), \quad (5.55)$$

$$\vec{q}_2 = \vec{k}_2 \sin(\alpha_2), \quad (5.56)$$

onde, $\alpha_1 \approx \alpha_2$ é o arco-tangente de $\frac{d}{Z}$. Aqui, d é o deslocamento lateral dos detectores e Z a distância entre o cristal e os detectores.

Consideraremos a conversão paramétrica monocromática, ou seja, $\omega_0 = \omega_1 + \omega_2$. Desta forma podemos desconsiderar os efeitos relativos ao índice de refração de grupo n_g . Assim,

$$A = \frac{n_1^{s_1}\omega_1 + n_2^{s_2}\omega_2 - n_0\omega_0}{c} + \frac{\sin^2(\alpha)}{2c} \left(n_1^{s_1} + n_2^{s_2} - \frac{(n_1^{s_1}\omega_1 - n_2^{s_2}\omega_2)^2}{n_0\omega_0} \right) - 2m\pi/\Lambda \quad (5.57)$$

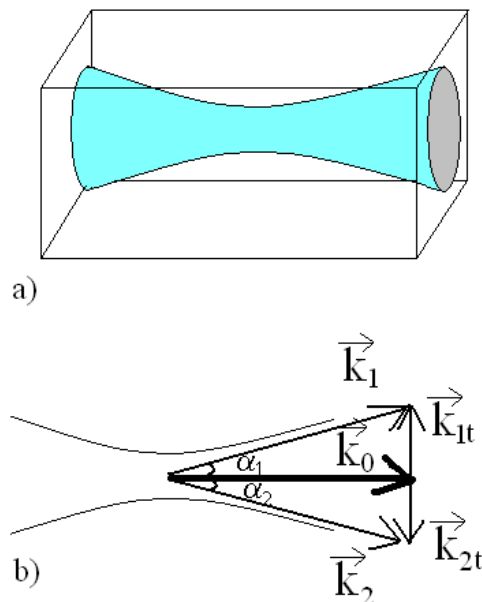


Figura 5.1: Esquema representando as componentes transversais dos vetores de onda gerados. a) Representa a cintura do feixe dentro do cristal; a cintura é de aproximadamente $50\mu\text{m}$ e a saída do feixe tem raio de cerca de $0,25\text{mm}$. b) Representação dos vetores de onda gerados e as respectivas componentes transversais.

Eficiência de geração para o caso com cristal periódico

Em geral, o *poling period* do quase-casamento de fases é colinear e o termo $2m\pi/\Lambda$ é escolhido de forma a cancelar os outros termos da Eq. (5.57). Neste caso, o perfil espacial do casamento de fase é conhecido como franjas de Maker [131] e é determinado pelo termo com $\sin(\alpha)$ da Eq. (5.57). As franjas de Maker terão um máximo central, quando α for nulo. A eficiência da conversão paramétrica descendente decairá com o aumento do ângulo de emissão do feixe.

Na Fig. 5.2, mostramos o perfil do casamento de fases. Para obter esta curva, consideramos os índices de refração para o caso tipo II da conversão paramétrica do cristal (KTP) apresentados anteriormente, Eq. (5.50), Eq. (5.51) e Eq. (5.52). Consideramos a radiação incidente com comprimento de onda de $\lambda = 413\text{nm}$, polarizado na direção y , e propagante na direção z do eixo cristalográfico do cristal. Os campos convertidos têm direções x e y de polarização. O cristal é periódico ao longo da direção z . O período associado

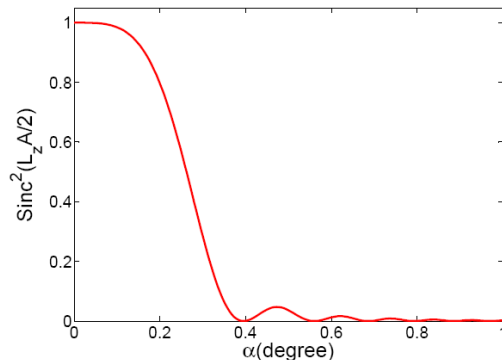


Figura 5.2: *Eficiência do quase casamento de fases como função do ângulo de emissão. Esta curva corresponde ao perfil do casamento de fases também conhecido como franjas de Maker [131].*

à primeira ordem é $\Lambda = 11.4617\mu\text{m}$. O cristal considerado tem comprimento efetivo de 0.96 cm.

Finalmente, quando observamos a eficiência de conversão paramétrica Fig. 5.2, ou seja, uma configuração experimental de forma que o ângulo de espalhamento dos fótons gerados seja inferior ao primeiro mínimo da franja de Maker. Temos o mesmo resultado obtido para o caso com cristal BBO na seção 4.3.

$$\begin{aligned} C(\vec{r}_1, \vec{r}_2) &= \langle \Psi | E^{(-)}(\vec{r}_1) E^{(-)}(\vec{r}_2) E^{(+)}(\vec{r}_1) E^{(+)}(\vec{r}_2) | \Psi \rangle \\ &= \text{const} \times |W(\vec{R}, Z_0)|^2, \end{aligned} \quad (5.58)$$

onde Z_0 distância entre o cristal e os detectores, \vec{R} está relacionado com o deslocamento lateral dos detectores Eq. (4.27).

5.3.2 Resultados experimentais

O aparato experimental está representado na Fig. 5.3. Utilizamos um laser pulsado com modos travados de Titânio Safira (Ti:Sa) com comprimento de onda de 826nm, que fornece pulsos com 200 fs de largura e com uma taxa de repetição de 76 MHz. O sistema de geração de segundo harmônico óptico, composto por duas lentes L_3 e L_4 com $f=5\text{cm}$ e um cristal BBO com 2mm de espessura; Espelhos dicróicos DM_1 e DM_2 refletem pulso azul e transmite o pulso infravermelho; os filtros azuis F_1 retiram o infravermelho restante do pulso; um sistema expensor de feixe composto por duas lentes e duas iris I_1 e I_2 melhoram a qualidade espacial e controlam a potência do

feixe; o feixe é focalizado no cristal PPKTP tipo II por uma lente L_2 com $f=1\text{m}$, gerando um par de fótons com polarização ortogonal entre si e com comprimento de onda de 826nm ; um espelho dicróico DM_3 reflete o pulso azul e transmite os fótons gerados; um filtro vermelho F_2 separa o pulso azul restante dos fótons gêmeos gerados; na posição SS coloca-se uma fenda simples com largura de $200\mu\text{m}$ para análise do perfil neste ponto; uma lente L_0 focaliza todo o campo transmitido pela fenda SS nos detectores D_1 e D_2 ; os detectores apresentam filtros passa banda f com largura de 40nm ; um divisor de feixes polarizador PBS separa os fótons gerados; as contagens recolhidas pelos detectores são analisadas por um sistema de contagem em coincidência com resolução de 1ns . Inicialmente variamos a fenda simples e recolhemos o perfil do feixe; em seguida inserimos a fenda dupla DS com largura $100\mu\text{m}$ e distância entre as fendas de $200\mu\text{m}$ no feixe de bombeamento e recolhemos o padrão de interferência do plano de detecção varrendo a fenda SS; e finalmente usamos a lente L_1 com $f=25\text{cm}$ para formar imagem da fenda dupla no plano de detecção. Seguimos o mesmo procedimento adotado na seção 4.3.2 do capítulo anterior. A Fig. 5.4 mostra o perfil do laser no plano de detecção. Este padrão foi obtido varrendo a fenda simples no plano de detecção, posição SS no aparato. A Fig. 5.5, mostra a taxa de coincidências medidas na transferência do espectro angular para estados com dois fótons e cristais não-lineares com inversão periódica de domínio. Este padrão foi obtido varrendo a fenda simples no plano de detecção, posição SS no aparato. Isto é equivalente a varrer os dois detectores simultaneamente, pois a lente L_0 focaliza todo o campo transmitido pela fenda SS nos detectores. Assim, este padrão deve ter a mesma magnitude do padrão observado para o feixe de bombeamento. A Fig. 5.6 compara o perfil transversal do laser com a taxa de coincidências em função da posição transversal da fenda SS. Nesta medida um cristal não-linear com inversão periódica de domínio foi usado para a geração dos fótons gêmeos. Observamos grande proximidade entre o padrão medido para o feixe de bombeamento e o padrão das coincidências indicando a transferência do espectro angular. Inserimos uma fenda dupla em uma posição anterior ao PPKTP e medimos o perfil do feixe difratado no plano de detecção. A Fig. 5.7 mostra a medida do perfil do laser após inserirmos uma fenda dupla. A Fig. 5.8 mostra uma comparação entre o perfil do laser, medido com o auxílio de um medidor de potência, e a taxa de coincidências. Aqui, também, varremos a fenda simples na posição SS do aparato e obtivemos um padrão em coincidências muito próximo do padrão observado para o feixe de bombeamento. Em seguida, formamos a imagem de uma fenda dupla no plano de detecção (posição SS na Fig. 5.3), usando o feixe de bombeamento. A lente e a fenda dupla foram colocadas em uma posição anterior ao cristal PPKTP de geração. A Fig. 5.9 mostra a medida

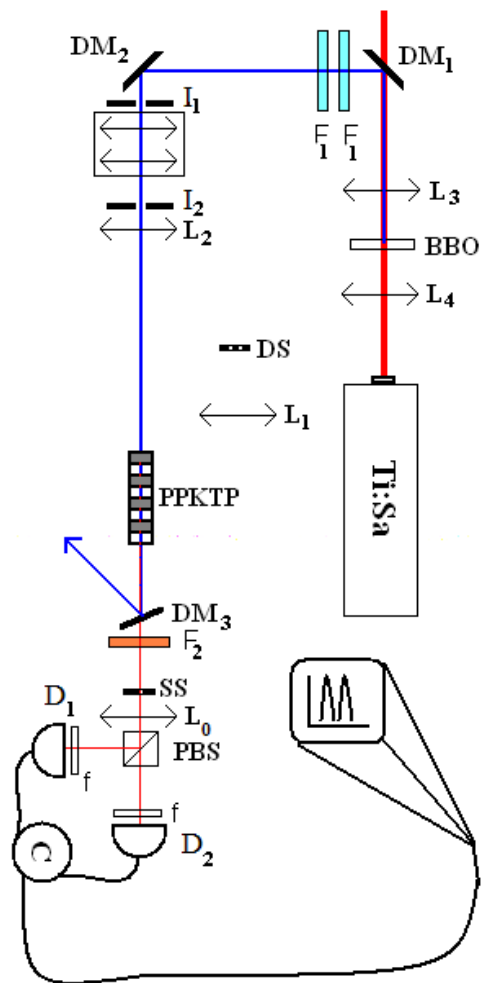


Figura 5.3: *Esquema experimental: (O esquema experimental aqui é semelhante ao apresentado na Fig. 4.4, com excessão do cristal de geração, aqui temos um cristal de PPKTP com domínio $\Lambda = 11,525\mu\text{m}$), ou seja, um laser pulsado de modos travados de titânio safira Ti:Sa; Sistema de geração de segundo harmônico óptico, duas lentes L_3 e L_4 com $f=5\text{cm}$ e um cristal BBO com 2mm de espessura; Espelhos dicróicos DM_1 DM_2 e DM_3 separam o pulso azul do infravermelho; os filtros azuis F_1 ; o sistema expensor de feixe composto por duas lentes e duas irises I_1 e I_2 melhoram a qualidade espacial e controlam a potência do feixe; o feixe é focalizado no cristal PPKTP tipo II de 10mm de comprimento por uma lente L_2 com $f=1\text{m}$; usamos um filtro vermelho F_2 ; na posição SS colocamos uma fenda simples com largura de $200\mu\text{m}$; uma lente L_0 focaliza todo o campo transmitido pela fenda SS nos detectores D_1 e D_2 ; os detectores apresentam filtros passa banda f com largura de 40nm ; um divisor de feixes polarizador PBS separa os fótons gerados; as contagens recolhidas pelos detectores são analisadas por um sistema de contagens em coincidência com resolução de 1ns ; DS é uma fenda dupla com largura $100\mu\text{m}$ e distância entre as fendas de $200\mu\text{m}$; e a lente L_1 tem $f=25\text{cm}$.*

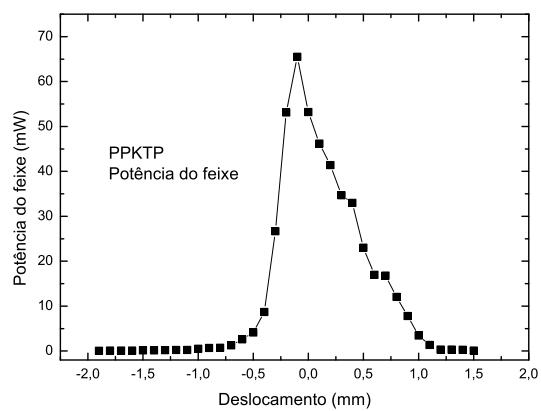


Figura 5.4: Perfil transversal do feixe de laser bombeador do PPKTP obtido varrendo-se a fenda SS de largura $200\mu\text{m}$ transversalmente e registrando a potência do feixe transmitido.

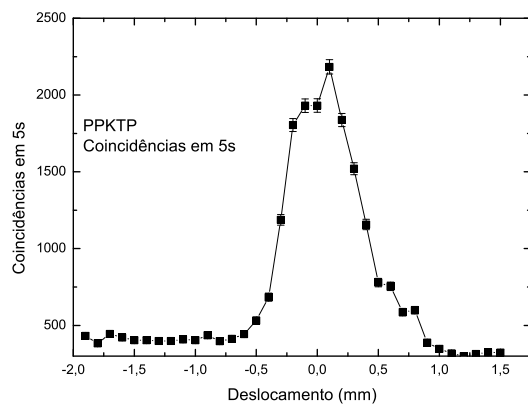


Figura 5.5: Coincidências em 5s em função da posição transversal da fenda simples SS.

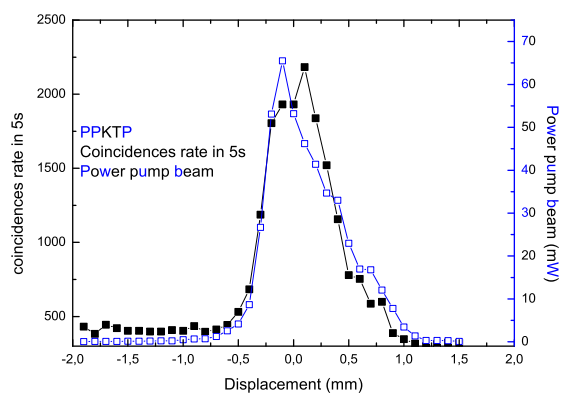


Figura 5.6: Comparação entre o perfil do laser bombeador (representados pelos quadrados vazios) e o número de coincidências em 5s (representados por quadrados cheios), mostrando a transferência do espectro angular para o par de fótons gêmeos quando um cristal de PPKTP é usado para a CPD.

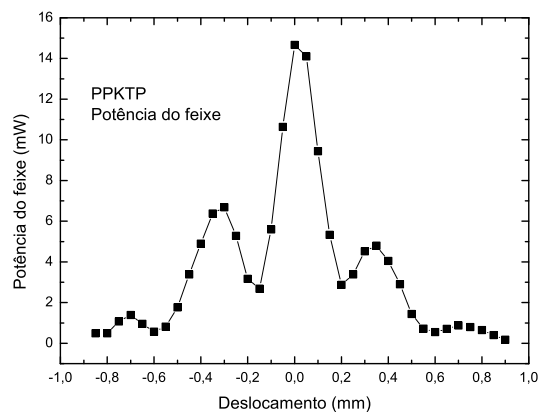


Figura 5.7: Perfil do laser bombeador do PPKTP, na transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos - Fenda dupla no feixe.

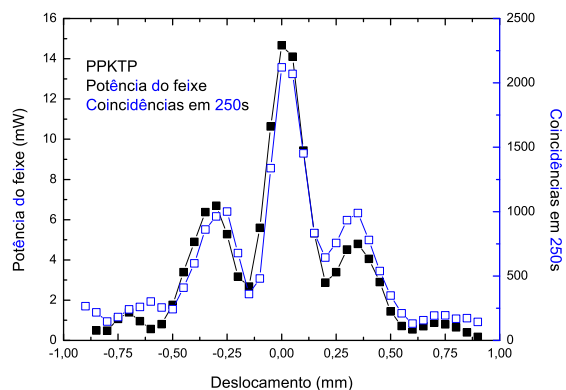


Figura 5.8: Comparação entre o Perfil do laser bombeador (simbolizado por quadrados cheios) e a taxa de coincidências (simbolizada por quadrados vazios) da transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e PPKTP - Fenda dupla no feixe.

do perfil do laser. A Fig. 5.10 mostra uma comparação entre o perfil do laser, medido com o uso de um medidor de potência, e as coincidências medidas, ambos em função da posição transversal da fenda SS. Novamente, obtivemos um padrão em coincidências muito próximo do padrão observado para o feixe de bombeamento.

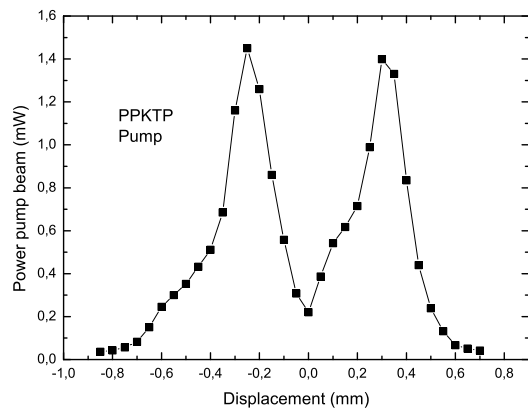


Figura 5.9: Perfil do laser bombeador do BBO na transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos - Imagem de fenda dupla.

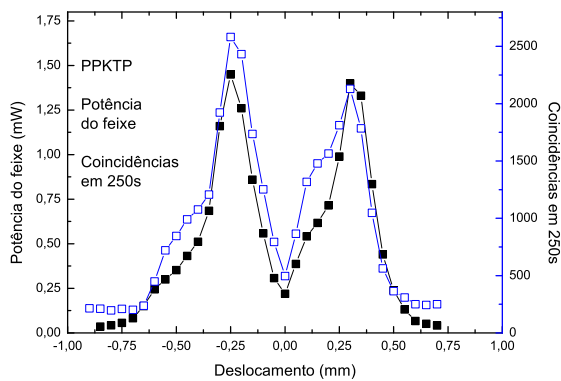


Figura 5.10: Comparação entre o Perfil do laser bombeador (simbolizado por quadrados cheios) e a taxa de coincidências (simbolizada por quadrados vazios), da transferência do espectro angular para um par de fótons gêmeos e PPKTP - Imagem de fenda dupla.

Parte III

FONTES DE ESTADOS COM QUATRO FÓTONS.

Introdução

Nesta terceira parte, estudaremos estados contendo dois e quatro fótons. O estado com quatro fótons gêmeos são gerados da conversão paramétrica descendente simultânea de dois fótons do feixe de bombeamento. Isto faz com que os fótons do estado com quatro fótons tenham as mesmas características dos fótons do estado com dois fótons gêmeos, possibilitando comodidades experimentais como o uso do mesmo aparato óptico para analisar estes estados.

Estados bifotônicos, como já foi dito na parte II, têm grandes aplicações e contribuições nos estudos sobre emaranhamento e em protocolos de informação e comunicação quânticas [21–30], a impossibilidade da clonagem quântica perfeita reforçam a segurança de sistemas de comunicação que usam estados quânticos [31–40], desde o artigo de Einstein Podolsky e Rosen (EPR) o emaranhamento [41–48], tem intrigado a comunidade científica fornecendo efeitos sem análogo clássico em diversos graus de liberdade como polarização [49–51], tempo e frequência [52–54], momento angular orbital [55–61], perfil transversal [120–125], estes são exemplos envolvendo fótons. Recentemente cristais com inversão periódica de domínio têm apresentado grande eficiência na geração de segundo harmônico óptico [2–4, 6, 7], bem como na conversão paramétrica descendente [9–15]. Esta geração eficiente possibilita a geração de estados com um grande número de fótons. Quando se amplia o número de estados emaranhados há a possibilidade de emaranhamentos mais resistentes a ruído como os chamados *cluster states* [78–91], que são estados com muitas partes emaranhadas e que ao se realizar uma medida em uma de suas partes, equivalente a um traço parcial, o estado resultante continua emaranhado. A possibilidade de criar estados emaranhados em mais do que um grau de liberdade, os chamados estados hiper-emaranhados [132–138] também é válida para estes estados com mais partes. Além de diversas outras aplicações envolvendo estados multifotônicos [92–104, 106–108] e envolvendo estados com muitas dimensões, os chamados estados de qudit [62–74].

Estudaremos a geração de dois e quatro fótons usando cristais não-lineares com um único período. No caso, usamos um cristal BBO com 5mm de espessura. Verificamos, teórica e experimentalmente, as dependências das detecções simples, duplas, triplas e quádruplas de fótons com a potência do feixe de bombeamento. Em seguida, apresentaremos, teórica e experimentalmente, o interferômetro de Hong-Ou-Mandel com um e dois pares de fótons. Neste experimento verificamos a dependência da visibilidade do padrão de interferência com a potência do feixe de bombeamento. Foram gerados estados singletos em polarização e os resultados experimentais estão em bom acordo com as previsões teóricas.

No capítulo 7, verificaremos a geração de dois e quatro fótons gêmeos via

conversão paramétrica descendente usando cristais com inversão periódica de domínios, no caso, um *Periodically Poled Potassium Titanyl Phosphate* (PPKTP) com 10mm de comprimento e período de $11,525\mu\text{m}$. Verificaremos as dependências das detecções simples, duplas, triplas e quádruplas de fótons com a potência do feixe de bombeamento. Estudaremos, teórica e experimentalmente, a transferência do espectro angular do feixe de bombeamento para estados com quatro fótons e a formação de imagem quântica usando estados com quatro fótons gerados por cristais com inversão periódica de domínio. Imagem obtida por dois fótons da conversão paramétrica descendente quando se ilumina um objeto foi tema de estudo da tese de Ivan Santos [146, 147] do nosso grupo e também de D. P. Caetano [77] da UFRJ (Universidade Federal do Rio de Janeiro) e de J. A. Huguenin e A. Z. Khoury [75, 76] da UFF (Universidade Federal Fluminense). Inicialmente, foi desenvolvido em nosso grupo uma teoria para a formação de imagens com dois fótons quando ampliadas por uma lente [146], e a comparação experimental da resolução espacial destas imagens quando comparadas com fontes coerentes clássicas [146] e fontes incoerentes clássicas [146]. Nesta tese, estudamos a imagem vista pela coincidência de quatro fótons, quando o objeto é colocado no feixe de bombeamento em um ponto anterior ao cristal de geração.

Capítulo 6

Estados com Quatro Fótons Gerados por Cristais Não-lineares com um Único Período

6.1 Dedução dos estados com quatro fótons gerados por cristais não-lineares com um único período

Trabalharemos, nesta seção, com estados contendo dois e quatro fótons gerados por cristais não-lineares com um único período. Os quatro fótons, tratados aqui, são originados da conversão paramétrica descendente de dois fótons do feixe de bombeamento.

Um esquema mostrando a geração do estado contendo quatro fótons está representado na Fig. 6.1. Nela, temos o fóton representado pelo vetor k_1 emaranhado com o fóton representado pelo vetor k_2 e o fóton representado pelo vetor k'_1 emaranhado com o fóton representado pelo vetor k'_2 . No entanto, devido à indistinguibilidade, teremos os quatro fótons emaranhados entre si, quando estes chegam simultaneamente nos detectores.

Considerando o estado geral da Eq. (4.10), para o caso em que temos a

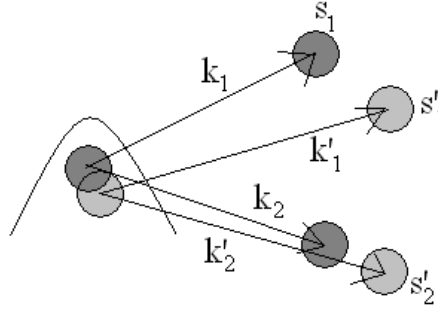


Figura 6.1: *Esquema mostrando a geração quádrupla de fótons. Originalmente temos dois pares de fótons gêmeos - o fóton representado pelo vetor k_1 emaranhado com o fóton representado pelo vetor k_2 e o fóton representado pelo vetor k'_1 emaranhado com o fóton representado pelo vetor k'_2 . Para os casos em que os fótons são degenerados em frequência e chegam simultaneamente nos detectores temos os quatro fótons emaranhados.*

geração de dois e quatro fótons gêmeos, temos o seguinte estado:

$$\begin{aligned}
 |\Psi\rangle &= M|\text{vac}\rangle + \sum_{s_1 s_2} \eta \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 \Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2) |\vec{k}_1, s_1\rangle |\vec{k}_2, s_2\rangle + \\
 &+ \sum_{s_1 s_2 s'_1 s'_2} \frac{\eta^2}{2} \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 \int d\vec{k}'_1 \int d\vec{k}'_2 \Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \Phi(\vec{k}'_1, \vec{k}'_2) \times \\
 &\times |\vec{k}_1, s_1\rangle |\vec{k}_2, s_2\rangle |\vec{k}'_1, s'_1\rangle |\vec{k}'_2, s'_2\rangle,
 \end{aligned} \tag{6.1}$$

onde η^2 é a probabilidade de geração de fótons (fração de fótons do feixe de bombeamento que são convertidos), M é uma constante que promove a normalização do estado ($\langle\Psi|\Psi\rangle = 1$), $\Phi(\vec{k}_i, \vec{k}_j)$ é a função correlação entre os fótons gêmeos com vetores de onda \vec{k}_i e \vec{k}_j , o ket $|\vec{k}_i, s_i\rangle$ representa um fóton com vetor de onda \vec{k}_i e polarização s_i , o somatório em s_j indica a configuração em polarização do estado ($|HV\rangle - |VH\rangle$) é um estado singleto em polarização que é obtida do somatório), $|\text{vac}\rangle$ representa o estado de vácuo e a função correlação $\Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ é normalizada da seguinte forma

$$\int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 |\Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2)|^2 = 1. \tag{6.2}$$

Faremos uso de orifícios no caminho dos feixes, de forma que os vetores de ondas serão dados por $k_i = n_i \omega_i / c$. Evidenciaremos a dependência do

estado em relação à amplitude do campo de bombeamento E_p . η é a fração de fótons do feixe de bombeamento que são convertidos. Assim, podemos escrever o estado acima, Eq. (6.1), da seguinte forma:

$$|\Psi\rangle = M|\text{vac}\rangle + \eta E_p |\Phi_1\rangle + \eta^2 E_p^2 |\Phi_2\rangle, \quad (6.3)$$

onde $\langle\Psi|\Psi\rangle = 1$, $\langle\Phi_i|\Phi_j\rangle = \delta_{ij}$ ($i, j = 1, 2$), E_p^2 é o número de fótons que chegam ao cristal, M é uma constante de normalização do estado $M \gg \eta E_p$ ($M \lesssim 1$), ηE_p é a amplitude de probabilidade de um fóton do feixe de bombeamento ser convertido no processo de conversão paramétrica descendente e

$$|\Phi_1\rangle = \sum_{s_1 s_2} \int d\omega_1 d\omega_2 \Phi(\omega_1, \omega_2) |\omega_1, s_1\rangle |\omega_2, s_2\rangle, \quad (6.4)$$

$$\begin{aligned} |\Phi_2\rangle &= \sum_{s_1 s_2 s'_1 s'_2} \frac{1}{2} \int d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi(\omega'_1, \omega'_2) \times \\ &\times |\omega_1, s_1\rangle |\omega_2, s_2\rangle |\omega'_1, s'_1\rangle |\omega'_2, s'_2\rangle. \end{aligned} \quad (6.5)$$

Aqui, o ket $|\omega_i, s_i\rangle$ representa o estado de Fock com frequência ω_i e a polarização s_i do fóton. A função correlação de fótons $\Phi(\omega_1, \omega_2)$ é normalizada da seguinte forma:

$$\int d\omega_1 d\omega_2 |\Phi(\omega_1, \omega_2)|^2 = 1. \quad (6.6)$$

6.2 Relação entre a potência do feixe de bombeamento e a geração do estado com quatro fótons

A Fig. 6.2 mostra o aparato utilizado para verificar as dependências das contagens diversas (simples, duplas, triplas e quádruplas) com a potência do laser.

Fizemos uso de um laser de Titânio Safira (Ti:Sa) pulsado [1] de modos travados que fornece pulsos curtos (200fs), cujo comprimento de onda é regulável entre 750nm e 1100nm. Ajustamos o comprimento de onda do feixe laser em 826nm. O feixe laser produzido é dobrado em frequência, via

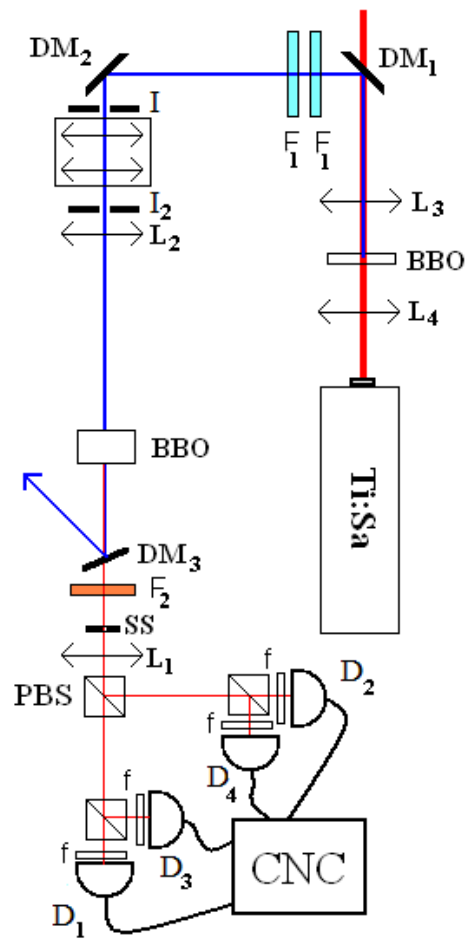


Figura 6.2: *Aparato experimental para verificar a dependência das diversas contagens (simples, duplas, triplas e quádruplas) com relação à potência do feixe de bombeamento - Esquema experimental semelhante ao apresentado na Fig. 4.4, no entanto, aqui, temos quatro detectores, ou seja temos um laser pulsado de modos travados de titânio safira Ti:Sa; Sistema de geração de segundo harmônico óptico, duas lentes L_3 e L_4 com $f=5\text{cm}$ e um cristal BBO com 2mm de espessura; Espelhos dicróicos DM_1 DM_2 e DM_3 separam o pulso azul do infravermelho; os filtros azuis F_1 ; o sistema expensor de feixe composto por duas lentes e duas íris I_1 e I_2 melhoram a qualidade espacial e controlam a potência do feixe; o feixe é focalizado no cristal BBO tipo II de 5mm de comprimento por uma lente L_2 com $f=1\text{m}$; usamos um filtro vermelho F_2 ; na posição SS colocamos um orifício circular com 3mm de diâmetro; uma lente L_0 focaliza todo o campo transmitido pela fenda SS nos detectores D_1 , D_2 , D_3 e D_4 ; os detectores apresentam filtros passa banda f com largura de 40nm ; um divisor de feixes polarizador PBS e outros dois divisores de feixes separam os quatro fótons gerados; as contagens recolhidas pelos detectores são analisadas por um sistema de contagens em coincidência com resolução de 1ns ; a lente L_1 tem $f=25\text{cm}$.*

geração de segundo harmônico óptico, num sistema com duas lentes L_3 e L_4 ($f=5\text{cm}$) e um cristal não-linear BBO com 2mm de espessura. Espelhos dicróicos DM_i refletem o feixe gerado, com 413nm, do feixe inicial, com 826nm. Um sistema de lentes e uma iris é usado para controlar a qualidade espacial do feixe com 413nm. Este feixe é incidido em um cristal não-linear BBO com 5mm de comprimento, onde dois e quatro fótons são gerados. Novamente, ressaltamos que os quatro fótons gerados são originados de dois fótons do feixe de bombeamento. Assim, os quatro fótons gerados têm as mesmas características (comprimento de onda, $\lambda = 826\text{nm}$) de um par de fótons gerados pela CPD. Os fótons gerados são separados do feixe laser pelo espelho dicróico DM_3 , que reflete o feixe de bombeamento com $\lambda = 413\text{nm}$ e transmite os fótons gerados com $\lambda = 826\text{nm}$. Na posição SS colocamos um orifício circular com 3mm de diâmetro. Os fótons são recolhidos pela lente L_1 ($f=25\text{cm}$), em frente ao conjunto de divisores, e enviados para os quatro detectores, colocados equidistantes da lente L_1 . A distância da lente L_1 aos detectores é tal que se tenha a focalização dos feixes gerados nos detectores. O divisor de feixes central do aparato (PBS) é um divisor de feixes polarizador, e, assim, os fótons transmitidos têm polarização horizontal (representados nos cálculos por operadores criação \hat{a}) e os fótons refletidos têm polarização vertical (representados nos cálculos por operadores criação \hat{b}). Os detectores são fotodetectores de avalanche da Perkin Elmer que trabalham no regime de contagem de um único fóton. As contagens registradas pelos detectores são analisadas por um sistema de detecção com resolução de 1ns. Sistema implementado por Álvaro Nunes de Oliveira, ex-membro do nosso grupo experimental de pesquisa.

6.2.1 Contagem simples de fótons

Para se ter a taxa de contagem simples em função da potência do feixe de bombeamento, precisamos avaliar os seguintes operadores intensidades [116]:

$$P_1 = \langle \Psi | \hat{\mathbf{I}}(t) | \Psi \rangle = \sum_i \langle \Psi | \hat{\mathbf{F}}_i^{(-)}(t) \hat{\mathbf{F}}_i^{(+)}(t) | \Psi \rangle = \sum_i |\hat{\mathbf{F}}_i^{(+)}(t) | \Psi \rangle|^2, \quad (6.7)$$

onde

$$\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \hat{a}(\omega) e^{-i\omega t} \quad (6.8)$$

ou

$$\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \hat{b}(\omega) e^{-i\omega t} \quad (6.9)$$

e $|\Psi\rangle$ é o estado com dois e quatro fótons Eq. (6.3).

Avaliando $\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Psi\rangle$, temos

$$\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}E_p\eta \int d\omega \hat{a}(\omega)e^{-i\omega t}|\Phi_1\rangle + \frac{1}{2\sqrt{2\pi}}E_p^2\eta^2 \int d\omega \hat{a}(\omega)e^{-i\omega t}|\Phi_2\rangle$$

e

$$\begin{aligned} \int d\omega \hat{a}(\omega)e^{-i\omega t}|\Phi_1\rangle &= \int \int \int d\omega d\omega_1 d\omega_2 \Phi(\omega_1, \omega_2)e^{-i\omega t} \hat{a}(\omega)\hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)|\text{vac}\rangle \\ \int d\omega \hat{a}(\omega)e^{-i\omega t}|\Phi_2\rangle &= \int \int \int \int \int d\omega d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \Phi(\omega_1, \omega_2)\Phi(\omega'_1, \omega'_2) \times \\ &\quad \times e^{-i\omega t} \hat{a}(\omega)\hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)\hat{a}^\dagger(\omega'_1)\hat{b}^\dagger(\omega'_2)|\text{vac}\rangle. \end{aligned}$$

Para calcular a contribuição de $\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Psi\rangle$, devemos usar os seguintes comutadores [140]:

$$[\hat{a}(\omega), \hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)] = \delta(\omega - \omega_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)$$

e

$$\begin{aligned} &[\hat{a}(\omega), \hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)\hat{a}^\dagger(\omega'_1)\hat{b}^\dagger(\omega'_2)] = \\ &\delta(\omega - \omega_1)\hat{a}^\dagger(\omega'_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)\hat{b}^\dagger(\omega'_2) + \delta(\omega - \omega'_1)\hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)\hat{b}^\dagger(\omega'_2). \end{aligned}$$

Além disso, quando avaliamos o módulo quadrado de $\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Psi\rangle$, obtemos contribuições de termos do tipo $|\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Phi_1\rangle|^2$ e $|\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Phi_2\rangle|^2$ somente, ou seja, termos cruzados da forma $\langle\Phi_2|\dots|\Phi_1\rangle$ são nulos. Assim, obtemos:

$$\begin{aligned} |\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Phi_1\rangle|^2 &= \frac{1}{2\pi}E_p^2\eta^2 \int \int \int \int d\bar{\omega}_1 d\bar{\omega}_2 d\omega_1 d\omega_2 \Phi(\omega_1, \omega_2)\Phi^*(\bar{\omega}_1, \bar{\omega}_2)e^{-i(\omega_1 - \bar{\omega}_1)t} \\ &\quad \times \langle\text{vac}|\hat{b}(\bar{\omega}_2)\hat{b}^\dagger(\omega_2)|\text{vac}\rangle \\ |\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Phi_2\rangle|^2 &= \frac{1}{4} \frac{1}{2\pi}E_p^4\eta^4 \int \int \int \int \int \int \int \int \int d\bar{\omega}_1 d\bar{\omega}_2 d\bar{\omega}'_1 d\bar{\omega}'_2 d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \\ &\quad \times \Phi^*(\bar{\omega}_1, \bar{\omega}_2)\Phi^*(\bar{\omega}'_1, \bar{\omega}'_2)\Phi(\omega_1, \omega_2)\Phi(\omega'_1, \omega'_2) \times \\ &\quad \times \left(e^{i\bar{\omega}_1 t} \hat{a}(\bar{\omega}'_1) + e^{i\bar{\omega}'_1 t} \hat{a}(\bar{\omega}_1) \right) \times \left(e^{-i\omega_1 t} \hat{a}^\dagger(\omega'_1) + e^{-i\omega'_1 t} \hat{a}^\dagger(\omega_1) \right) \times \\ &\quad \langle\text{vac}|\hat{b}(\bar{\omega}_2)\hat{b}(\bar{\omega}'_2)\hat{b}^\dagger(\omega_2)\hat{b}^\dagger(\omega'_2)|\text{vac}\rangle. \end{aligned}$$

O termo acima dá a probabilidade temporal de detecção de um fóton; para se ter a contagem simples no tempo devemos integrar a probabilidade acima na janela de detecção, podemos considerar a janela de detecção grande comparada com os tempos de correlação dos fótons [116, 148] e integrar de $-\infty$ a $+\infty$ no tempo. Lembremos, também, que $\int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\omega' - \bar{\omega}')t} dt = 2\pi\delta(\omega' - \bar{\omega}')$,

após integrarmos em todos os tempos t . Assim,

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} |\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Phi_1\rangle|^2 dt &= E_p^2 \eta^2 \int \int \int \int d\bar{\omega}_1 d\bar{\omega}_2 d\omega_1 d\omega_2 \Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi^*(\bar{\omega}_1, \bar{\omega}_2) \\ &\quad \times \delta(\bar{\omega}_1 - \omega_1) \delta(\bar{\omega}_2 - \omega_2), \\ \int_{-\infty}^{\infty} |\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Phi_2\rangle|^2 dt &= E_p^4 \eta^4 \int \int \int \int \int \int \int \int d\bar{\omega}_1 d\bar{\omega}_2 d\bar{\omega}'_1 d\bar{\omega}'_2 d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \\ &\quad \times \Phi^*(\bar{\omega}_1, \bar{\omega}_2) \Phi^*(\bar{\omega}'_1, \bar{\omega}'_2) \Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi(\omega'_1, \omega'_2) \times \\ &\quad \times (\delta(\bar{\omega}_1 - \omega_1) \delta(\bar{\omega}'_1 - \omega'_1) + \delta(\bar{\omega}'_1 - \omega_1) \delta(\bar{\omega}_1 - \omega'_1)) \times \\ &\quad \times (\delta(\bar{\omega}_2 - \omega_2) \delta(\bar{\omega}'_2 - \omega'_2) + \delta(\bar{\omega}'_2 - \omega_2) \delta(\bar{\omega}_2 - \omega'_2)). \end{aligned}$$

Finalmente, obtemos a seguinte contribuição para a contagem simples:

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} |\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Phi_1\rangle|^2 dt &= E_p^2 \eta^2 \int \int d\omega_1 d\omega_2 |\Phi(\omega_1, \omega_2)|^2 \\ \int_{-\infty}^{\infty} |\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t)|\Phi_2\rangle|^2 dt &= 2E_p^4 \eta^4 \int \int \int \int d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 [|\Phi(\omega_1, \omega_2)|^2 |\Phi(\omega'_1, \omega'_2)|^2 \\ &\quad + \Phi^*(\omega'_1, \omega_2) \Phi^*(\omega_1, \omega'_2) \Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi(\omega'_1, \omega'_2)]. \end{aligned}$$

Ou, de outra forma [139]:

$$\eta^2 E_p^2 + 2E_p^4 (A + \varepsilon), \quad (6.10)$$

onde

$$\begin{aligned} A &= |\eta|^4 \int \int \int \int d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 |\Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi(\omega'_1, \omega'_2)|^2 \\ &= |\eta|^4 \end{aligned} \quad (6.11)$$

é a probabilidade acidental de detecção de fótons quádruplos [139, 140], note que esta probabilidade é o produto da probabilidade de detecção dos fótons com frequências ω_1 e ω_2 com a probabilidade de detecção dos fótons com frequências ω'_1 e ω'_2 ; e [139]

$$\varepsilon = |\eta|^4 \int d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi(\omega'_1, \omega'_2) \Phi^*(\omega_1, \omega'_2) \Phi^*(\omega'_1, \omega_2) \quad (6.12)$$

é o excesso de contagens dadas pelo agrupamento de fótons [139, 140], note que não se pode escrever as funções emaranhamento ($\Phi(\omega_i, \omega_j)$) como um produto de funções que dependem somente de ω_1 e ω_2 ou ω'_1 e ω'_2 . Assim, a contagem simples tem a seguinte dependência com relação à potência:

$$C_1 = \alpha E_p^2 + \beta E_p^4, \quad (6.13)$$

onde α está relacionado com a probabilidade de geração de um par de fótons gêmeos e β está relacionada com a probabilidade de geração quádrupla de fótons. Além disso, podemos escrever a contagem simples em função da potência do feixe de bombeamento, pois $E_p^2 = \frac{P}{N h \nu}$, onde N é a taxa de repetição do laser, ν é a frequência do feixe de bombeamento e h a constante de Planck. Assim,

$$C_1 = aP + bP^2, \quad (6.14)$$

onde a constante a está relacionada com a taxa de conversão paramétrica descendente para um par e b está relacionado com a probabilidade de dois fótons do bombeamento sofrerem, simultaneamente, conversão paramétrica descendente originando quatro fótons.

A Fig. 6.3 mostra a dependência das contagens simples com relação à potência do laser de bombeamento.

6.2.2 Coincidências duplas de fótons

Para termos as coincidências duplas em função da potência do feixe de bombeamento precisamos avaliar as seguintes funções correlação entre os operadores de intensidade [116].

$$\begin{aligned} P_2 &= \langle \Psi | \hat{\mathbf{I}}_i(t_1) \hat{\mathbf{I}}_j(t_2) | \Psi \rangle \\ &= \sum_{i,j} \langle \Psi | \hat{\mathbf{F}}_j^{(-)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_i^{(-)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_i^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_j^{(+)}(t_2) | \Psi \rangle \\ &= \sum_{i,j} |\hat{\mathbf{F}}_i^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_j^{(+)}(t_2) | \Psi \rangle|^2, \end{aligned} \quad (6.15)$$

Quando avaliamos as contagens em coincidências temos duas contribuições distintas: uma dada por

$$\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2) | \Psi \rangle \quad (6.16)$$

ou

$$\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_2) | \Psi \rangle, \quad (6.17)$$

isto é, dada pela mesma polarização. A outra dada por

$$\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_2) | \Psi \rangle \quad (6.18)$$

ou

$$\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2) | \Psi \rangle, \quad (6.19)$$

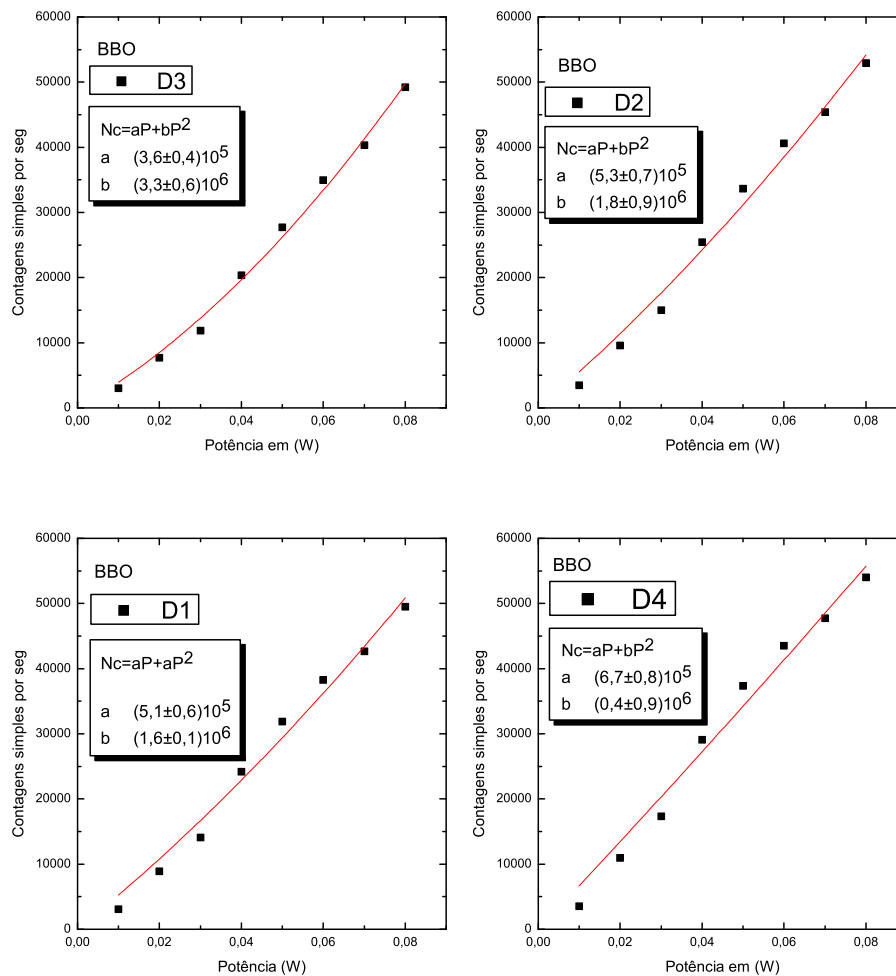


Figura 6.3: Contagens simples em função da potência média do laser usando cristal BBO. As medidas foram feitas através da montagem experimental da Fig. 6.2. A potência do feixe laser foi medida antes do cristal com um medidor de potência óptico. As barras de erro têm o tamanho dos pontos

ou seja, por polarizações trocadas.

Avaliemos

$$\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2)|\Psi\rangle = \frac{\eta^2}{2}E_p^2\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2)|\Phi_2\rangle : \quad (6.20)$$

o termo com um par de fótons $|\Phi_1\rangle$ contém fótons com polarização oposta e tem contribuição nula para o caso acima. Assim,

$$\begin{aligned} \iint d\omega\hat{a}(\omega)e^{-i\omega t_1}d\omega'\hat{a}(\omega')e^{-i\omega't_2}|\Phi_2\rangle &= \iiint\iiint d\omega d\omega' d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \times \\ &\times \Phi(\omega_1, \omega_2)\Phi(\omega'_1, \omega'_2)e^{-i\omega t_1}e^{-i\omega't_2} \times \\ &\times \hat{a}(\omega)\hat{a}(\omega')\hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{a}^\dagger(\omega'_1) \times \\ &\times \hat{b}^\dagger(\omega_2)\hat{b}^\dagger(\omega'_2)|\text{vac}\rangle. \end{aligned}$$

Devemos avaliar o seguinte comutador (vide Apêndice Eq. (A.2)):

$$[\hat{a}(\omega)\hat{a}(\omega'), \hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{a}^\dagger(\omega'_1)] = \delta(\omega - \omega_1)\delta(\omega' - \omega'_1) + \delta(\omega' - \omega_1)\delta(\omega - \omega'_1) + \text{termos que aniquilam o vácuo.}$$

Após substituir o comutador acima, teremos termos relacionados com o operador \hat{b}^\dagger . Após avaliar o módulo quadrado $|\frac{\eta^2}{2}E_p^2\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2)|\Phi_2\rangle|^2$ e efetuarmos a integração em todos os tempos t_1 e t_2 , teremos uma dependência do tipo $C_{2A} = 2E_p^4(A + \varepsilon)$. Substituindo $E_p^2 = \frac{P}{N\hbar\nu}$, obtemos:

$$C_{2A} = \text{const}P^2. \quad (6.21)$$

A constante está relacionada com a probabilidade de geração quádrupla.

Avaliemos, agora, o termo

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_2)|\Psi\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}}E_p\eta \int d\omega\hat{a}(\omega)e^{-i\omega t_1} \int d\omega'\hat{b}(\omega')e^{-i\omega't_2}|\Phi_1\rangle \\ &+ \frac{1}{2\sqrt{2\pi}}E_p^2\eta^2 \int d\omega\hat{a}(\omega)e^{-i\omega t_1} \int d\omega'\hat{b}(\omega')e^{-i\omega't_2}|\Phi_2\rangle. \end{aligned}$$

Devemos usar os seguintes comutadores:

$$[\hat{a}(\omega)\hat{b}(\omega'), \hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)] = \delta(\omega - \omega_1)\delta(\omega' - \omega_2) + \text{termos que aniquilam o vácuo,}$$

e

$$[\hat{a}(\omega)\hat{b}(\omega'), \hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)\hat{a}^\dagger(\omega'_1)\hat{b}^\dagger(\omega'_2)] = \delta(\omega - \omega_1)\delta(\omega' - \omega_2)\hat{a}^\dagger(\omega'_1)\hat{b}^\dagger(\omega'_2) + \delta(\omega - \omega'_1)\delta(\omega' - \omega'_2)\hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2) + \text{termos que aniquilam o vácuo.}$$

Além disso, quando avaliamos o módulo quadrado de $\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_2)|\Psi\rangle$, ocorrerão contribuições somente de termos dos tipos $|\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_2)|\Phi_1\rangle|^2$

e $|\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_2)|\Phi_2\rangle|^2$. Logo, termos cruzados da forma $\langle\Phi_2|\dots|\Phi_1\rangle$ apresentam contribuição nula.

Após integrarmos em todos os tempos t_1 e t_2 , obtemos a seguinte contribuição para as contagens em coincidências com polarização oposta:

$$C_{2B} = \alpha' E_p^2 + \beta' E_p^4, \quad (6.22)$$

semelhante ao caso da contagem simples.

Assim, a contagem simples com relação à potência do feixe de bombeamento, tem a seguinte forma:

$$C_{2B} = a' P + b' P^2, \quad (6.23)$$

onde a constante a' está relacionada com a taxa de conversão paramétrica descendente e b' está relacionada com a probabilidade de dois fótons do feixe de bombeamento converterem-se, simultaneamente, em quatro fótons gêmeos.

A Fig. 6.4 mostra a dependência das coincidências duplas com a potência do laser de bombeamento. As contagens D1D3 e D2D4 têm a mesma polarização, ou seja, são do tipo C_{2A} ; enquanto as coincidências restantes apresentam polarizações opostas, ou seja, são do tipo C_{2B} . Note que a ordem de grandeza das coincidências é diferente, sendo que as coincidências com mesma polarização somente ocorrem quando há geração de quatro fótons.

6.2.3 Coincidências triplas de fótons

Para termos as coincidências triplas em função da potência do feixe de bombeamento precisamos avaliar as seguintes funções correlação entre os operadores de intensidade [116].

$$\begin{aligned} P_3 &= \langle\Psi|\hat{\mathbf{I}}_i(t_1)\hat{\mathbf{I}}_j(t_2)\hat{\mathbf{I}}_k(t_3)|\Psi\rangle \\ &= \sum_{i,j,k} \langle\Psi|\hat{\mathbf{F}}_k^{(-)}(t_3)\hat{\mathbf{F}}_j^{(-)}(t_2)\hat{\mathbf{F}}_i^{(-)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_i^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_j^{(+)}(t_2)\hat{\mathbf{F}}_k^{(+)}(t_3)|\Psi\rangle \\ &= \sum_{i,j,k} |\hat{\mathbf{F}}_i^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_j^{(+)}(t_2)\hat{\mathbf{F}}_k^{(+)}(t_3)|\Psi\rangle|^2, \end{aligned} \quad (6.24)$$

Quando avaliamos as contagens em coincidências triplas temos contribuições dadas por:

$$\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2)\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_3)|\Psi\rangle \quad (6.25)$$

ou

$$\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_2)\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_3)|\Psi\rangle. \quad (6.26)$$

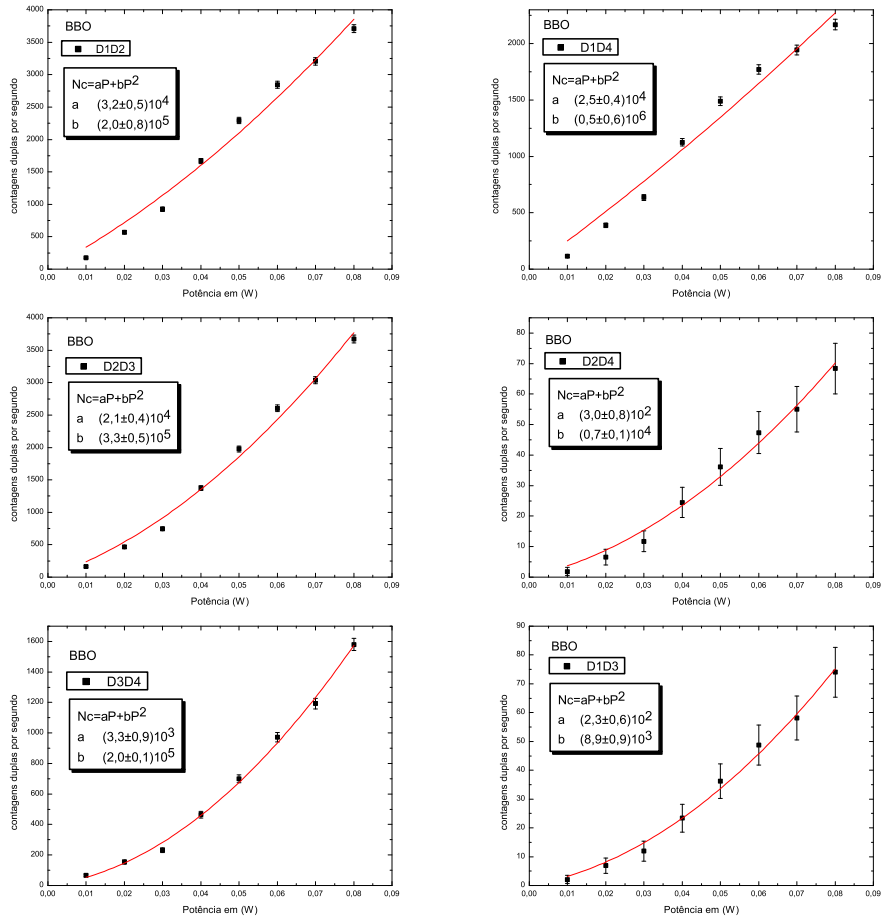


Figura 6.4: Coincidências duplas em função da potência do feixe de bombeamento, usando cristal BBO para a conversão paramétrica descendente. As medidas foram feitas através da montagem experimental da Fig. 6.2

Avaliemos

$$\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2)\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_3)|\Psi\rangle = \frac{\eta^2}{2}E_p^2\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2)\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_3)|\Phi_2\rangle, \quad (6.27)$$

pois o termo com um par de fótons será aniquilado. Assim,

$$\begin{aligned} & \iiint d\omega\hat{a}(\omega)e^{-i\omega t_1}d\omega'\hat{a}(\omega')e^{-i\omega't_2}d\omega''\hat{b}(\omega'')e^{-i\omega''t_3}|\Phi_2\rangle = \\ & \iiint\iiint\iiint d\omega d\omega' d\omega'' d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \Phi(\omega_1, \omega_2)\Phi(\omega'_1, \omega'_2)e^{-i\omega t_1}e^{-i\omega't_2}e^{-i\omega''t_3} \times \\ & \quad \times \hat{a}(\omega)\hat{a}(\omega')\hat{b}(\omega'')\hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{a}^\dagger(\omega'_1)\hat{b}^\dagger(\omega_2)\hat{b}^\dagger(\omega'_2)|\text{vac}\rangle. \end{aligned}$$

Usando os seguintes comutadores:

$$[\hat{a}(\omega)\hat{a}(\omega'), \hat{a}^\dagger(\omega_1)\hat{a}^\dagger(\omega'_1)] = \delta(\omega - \omega_1)\delta(\omega' - \omega'_1) + \delta(\omega' - \omega_1)\delta(\omega - \omega'_1) + \text{termos que aniquilam o vácuo.}$$

e

$$[\hat{b}(\omega''), \hat{b}^\dagger(\omega_2)\hat{b}^\dagger(\omega'_2)] = \delta(\omega'' - \omega_2)\hat{b}^\dagger(\omega'_2) + \delta(\omega'' - \omega'_2)\hat{b}^\dagger(\omega_2) + \text{termos que aniquilam o vácuo,}$$

obtemos termos relacionados com o operador \hat{b}^\dagger .

Ao avaliarmos o módulo quadrado $|\frac{\eta^2}{2}E_p^2\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1)\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2)\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_3)|\Phi_2\rangle|^2$ e efetuarmos a integração em todos os tempos t_1 , t_2 e t_3 , ocorre uma dependência do tipo $C_3 = 2E_p^4(A + \varepsilon)$.

Substituindo $E_p^2 = \frac{P}{N\hbar\nu}$, obtemos

$$C_3 = \text{const}'P^2. \quad (6.28)$$

Novamente, a constante está relacionada com a probabilidade de dois fótons do bombeamento converterem-se em quatro fótons gêmeos.

A Fig. 6.5 mostra a dependência das coincidências triplas com relação à potência do laser de bombeamento.

6.2.4 Coincidências quádruplas de fótons

Para termos as coincidências quádruplas em função da potência do feixe de bombeamento precisamos avaliar as seguintes funções correlação entre os

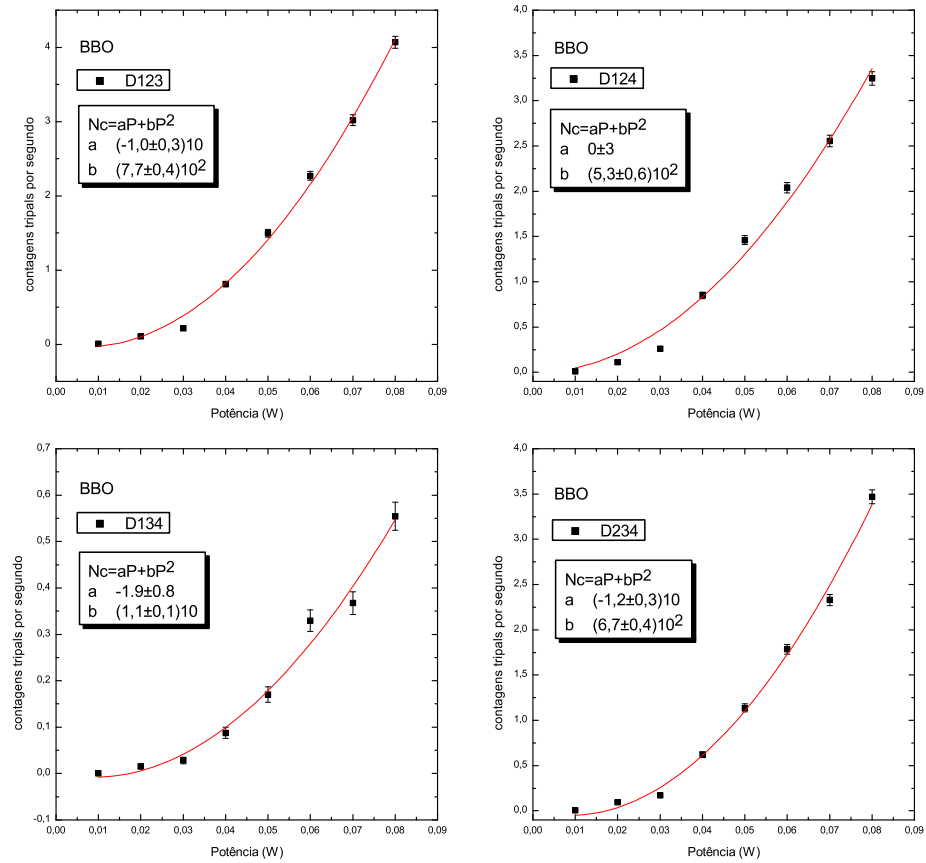


Figura 6.5: Coincidências triplas em função da potência usando cristal BBO. As medidas foram feitas através da montagem experimental da Fig. 6.2.

operadores de intensidade [116].

$$\begin{aligned}
P_4 &= \langle \Psi | \hat{\mathbf{I}}_i(t_1) \hat{\mathbf{I}}_j(t_2) \hat{\mathbf{I}}_k(t_3) \hat{\mathbf{I}}_l(t_4) | \Psi \rangle \\
&= \sum_{i,j,k,l} \langle \Psi | \hat{\mathbf{F}}_l^{(-)}(t_4) \hat{\mathbf{F}}_k^{(-)}(t_3) \hat{\mathbf{F}}_j^{(-)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_i^{(-)}(t_1) \\
&\quad \times \hat{\mathbf{F}}_i^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_j^{(+)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_k^{(+)}(t_3) \hat{\mathbf{F}}_l^{(+)}(t_4) | \Psi \rangle \\
&= \sum_{i,j,k,l} |\hat{\mathbf{F}}_i^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_j^{(+)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_k^{(+)}(t_3) \hat{\mathbf{F}}_l^{(+)}(t_4) | \Psi \rangle|^2, \tag{6.29}
\end{aligned}$$

As contagens em coincidências quádruplas contribuem da seguinte forma:

$$\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_3) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_4) | \Psi \rangle. \tag{6.30}$$

Notamos que

$$\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_3) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_4) | \Psi \rangle = \tag{6.31}$$

$$\frac{\eta^2}{2} E_p^2 \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_3) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_4) | \Phi_2 \rangle, \tag{6.32}$$

pois o termo com um par de fótons será aniquiliado. Assim,

$$\begin{aligned}
&\int \int \int \int d\omega \hat{a}(\omega) e^{-i\omega t_1} d\omega' \hat{a}(\omega') e^{-i\omega' t_2} d\omega'' \hat{b}(\omega'') e^{-i\omega'' t_3} d\omega''' \hat{b}(\omega''') e^{-i\omega''' t_4} | \Phi_2 \rangle = \\
&\int \int \int \int \int \int \int d\omega d\omega' d\omega'' d\omega''' d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 e^{-i\omega t_1} e^{-i\omega' t_2} e^{-i\omega'' t_3} e^{-i\omega''' t_4} \times \\
&\quad \times \Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi(\omega'_1, \omega'_2) \hat{a}(\omega) \hat{a}(\omega') \hat{b}(\omega'') \hat{b}(\omega''') \hat{a}^\dagger(\omega_1) \hat{a}^\dagger(\omega'_1) \hat{b}^\dagger(\omega_2) \hat{b}^\dagger(\omega'_2) | \text{vac} \rangle.
\end{aligned}$$

Substituindo os seguintes comutadores:

$$\begin{aligned}
&[\hat{a}(\omega) \hat{a}(\omega'), \hat{a}^\dagger(\omega_1) \hat{a}^\dagger(\omega'_1)] = \delta(\omega - \omega_1) \delta(\omega' - \omega'_1) + \\
&+ \delta(\omega' - \omega_1) \delta(\omega - \omega'_1) + \text{termos que aniquilam o vácuo.}
\end{aligned}$$

e

$$\begin{aligned}
&[\hat{b}(\omega'') \hat{b}(\omega'''), \hat{b}^\dagger(\omega_2) \hat{b}^\dagger(\omega'_2)] = \delta(\omega'' - \omega_2) \delta(\omega''' - \omega'_2) + \\
&+ \delta(\omega'' - \omega'_2) \delta(\omega''' - \omega_2) + \text{termos que aniquilam o vácuo,}
\end{aligned}$$

avaliando o módulo quadrado,

$$|\frac{\eta^2}{2} E_p^2 \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_3) \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_4) | \Phi_2 \rangle|^2,$$

e, por fim, efetuando a integração em todos os tempos t_1 , t_2 , t_3 e t_4 , obtemos uma dependência do tipo $C_4 = 2E_p^4(A + \varepsilon)$. Substituindo $E_p^2 = \frac{P}{Nh\nu}$, encontramos

$$C_4 = \text{const}'' P^2, \tag{6.33}$$

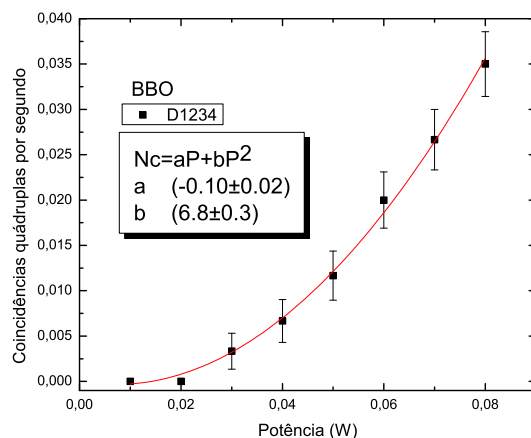


Figura 6.6: *Coincidências quádruplas em função da potência do feixe de bombeamento, usando o cristal de BBO para CPD. As medidas foram feitas através da montagem experimental da Fig. 6.2.*

onde a constante está relacionada com a probabilidade de dois fótons do feixe de bombeamento converterem-se, simultaneamente, em quatro fótons gêmeos.

A Fig. 6.6 mostra a dependência das coincidências quádruplas com relação à potência do laser de bombeamento, quando utilizamos o cristal BBO.

6.3 Interferômetro de Hong-Ou-Mandel com um e dois pares de fótons

6.3.1 Teoria

Com o intuito de mostrar um resultado com dois e quatro fótons e um cristal não-linear com um único período, apresentamos de forma sucinta o interferômetro de Hong-Ou-Mandel (HOM) com um e dois pares de fótons. Os fótons são gerados em um regime com campo pulsado intenso em um cristal de forma a termos geração de um e dois pares de fótons via conversão paramétrica descendente CPD [139,140]. Os dois e quatro fótons são gerados em um intervalo de tempo bem menor que a janela temporal de coincidências. Um tratamento multimodal é usado para obter a visibilidade do padrão de

interferência em função da potência do feixe de bombeamento. O experimento realizado usa o casamento de fase tipo II e a nomenclatura é baseada em [139] e em estudos recentes [140]. A teoria multimodal e a análise dos resultados experimentais foi realizada por nós e publicada na referência. [144]. As medidas foram realizados na universidade de Roma.

O interferômetro HOM com um e dois pares de fótons

O esquema experimental do interferômetro de Hong-Ou-Mandel está representado na Fig. 6.7. Um feixe laser incide em um cristal que gera um e dois pares de fótons que propagam em dois caminhos diferentes a e b , aqui usaremos os rótulos a e b para nos referirmos aos braços do interferômetro, anteriormente usamos a e b para designar polarização, no entanto, aqui, temos que nos referir a caminhos e à polarização do fóton e o faremos da seguinte forma: a_H , fótons no caminho a com polarização horizontal, por exemplo. Esta alteração será feita somente nesta seção referente ao Interferômetro de Hong-Ou-Mandel com um e dois pares de fótons. Os fótons são gerados em um processo não-colinear de CPD. Cada feixe é direcionado para um divisor de feixes 50/50 com o uso de espelhos em cada caminho. Os feixes na saída do divisor de feixes passam por filtros de interferência F e são recolhidos pelos detectores D_1 e D_2 . Um sistema eletrônico e detectores de avalanche contam os fótons coincidentes em função da diferença de caminhos entre os feixes (δ), deslocando-se o divisor do feixe. (Fig. (6.7)).

Interferômetro de HOM com um e dois pares de fótons e com casamento de fase tipo II

Detalhes do cálculo teórico desta seção, bem como a teoria para o caso com casamento de fase tipo I, podem ser encontrados em [144, 145]. Usamos um estado singleto baseado na Eq. (6.3):

$$|\Psi\rangle = M|\text{vac}\rangle + \eta E_p |\Phi_1\rangle + \eta^2 E_p^2 |\Phi_2\rangle, \quad (6.34)$$

onde

$$\begin{aligned} |\Phi_1\rangle = & \frac{1}{\sqrt{2}} \int d\omega_1 d\omega_2 \Phi(\omega_1, \omega_2) \times \\ & \times \left[\hat{a}_H^\dagger(\omega_1) \hat{b}_V^\dagger(\omega_2) - \hat{a}_V^\dagger(\omega_1) \hat{b}_H^\dagger(\omega_2) \right] |\text{vac}\rangle \end{aligned} \quad (6.35)$$

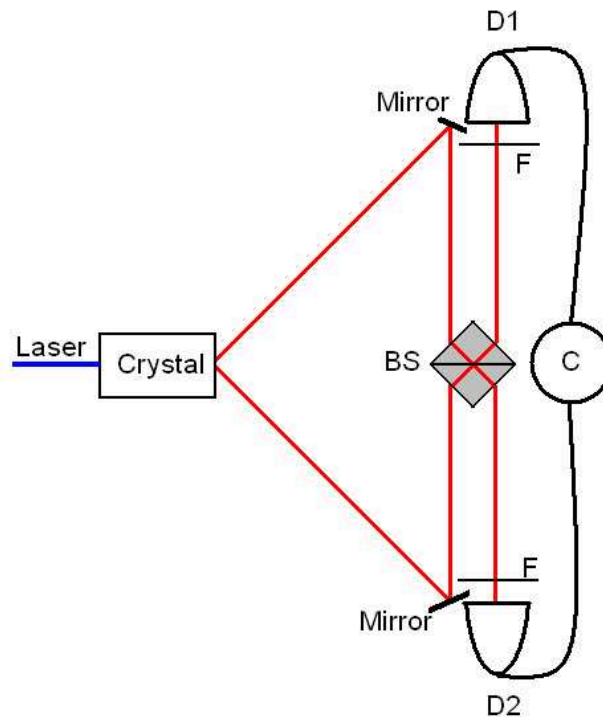


Figura 6.7: O aparato experimental do Interferômetro Hong-Ou-Mandel. Fonte laser formada por um amplificador ($RegA^{TM}$ – Coherent) que produz pulsos com 200 fs de largura temporal e uma taxa de repetição de $N = 250$ KHz. Este laser amplifica os pulsos do laser de modos travados ($Mira^{TM}$ – Coherent), cuja repetição é de 76 MHz e opera com 795 nm de comprimento de onda. Pulsos de UV são produzidos via geração de segundo harmônico óptico em um cristal β -Borato de Bário (BBO) com 1mm de espessura e casamento de fase tipo I. A potência média de geração é de 150mW. O feixe é focalizado no cristal por uma lente com distância focal de 1.0m. Dada a alta energia por pulso, dois e quatro fótons em estado singleto são gerados, num processo de conversão paramétrica descendente de um e de dois fótons do feixe de bombeamento, simultaneamente. Fótons com a mesma frequência ($\omega_1 = \omega_2 \approx \frac{\omega_0}{2}$) são gerados na saída do cristal, formando um ângulo de 2.5° com o feixe de bombeamento. Estes fótons são selecionados por dois orifícios de 1.5 mm de diâmetro colocados nos caminhos do feixe gerado. Os pares de fótons são gerados em um estado singleto de polarização, conforme mostrado na referência [142]. Os pares de fótons são direcionados para um divisor de feixes 50/50 (BS). Deslocando o divisor de feixes BS, com um motor de passo, podemos balancear os caminhos dos fótons 1 (signal) e 2 (idler), sem perder o alinhamento do interferômetro. Ambos os detectores D1 e D2 são fotodetectores de avalanche (Perkin-Elmer-SPCM-AQR-14) operando em modo de contagens de fótons e F1 e F2 são filtros de interferência colocados na frente destes, com 3.0 nm de largura à meia altura e centrados em 795 nm. A taxa de coincidências é medida por meio de circuitos com 3 ns de resolução temporal [148].

e

$$\begin{aligned}
|\Phi_2\rangle &= \frac{1}{4} \int d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi(\omega'_1, \omega'_2) \\
&\times \{ \hat{a}_H^\dagger(\omega_1) \hat{b}_V^\dagger(\omega_2) \hat{a}_H^\dagger(\omega'_1) \hat{b}_V^\dagger(\omega'_2) \\
&\quad - \hat{a}_H^\dagger(\omega_1) \hat{b}_V^\dagger(\omega_2) \hat{a}_V^\dagger(\omega'_1) \hat{b}_H^\dagger(\omega'_2) \\
&\quad - \hat{a}_V^\dagger(\omega_1) \hat{b}_H^\dagger(\omega_2) \hat{a}_H^\dagger(\omega'_1) \hat{b}_V^\dagger(\omega'_2) \\
&\quad + \hat{a}_V^\dagger(\omega_1) \hat{b}_H^\dagger(\omega_2) \hat{a}_V^\dagger(\omega'_1) \hat{b}_H^\dagger(\omega'_2) \} |\text{vac}\rangle, \tag{6.36}
\end{aligned}$$

H e V indicam as polarizações horizontal e vertical do fóton, respectivamente.

Fazendo uso dos operadores campo, abaixo [116, 144, 145]:

$$\begin{aligned}
\hat{\mathbf{F}}_1^{(+)}(t_1) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_1) + \hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_1 + \delta)], \\
\hat{\mathbf{F}}_2^{(+)}(t_2) &= \frac{1}{\sqrt{2}} [\hat{\mathbf{F}}_a^{(+)}(t_2) - \hat{\mathbf{F}}_b^{(+)}(t_2 - \delta)], \tag{6.37}
\end{aligned}$$

onde os operadores do campo elétrico na entrada do divisor de feixes são:

$$\begin{aligned}
\hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(+)}(t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \hat{a}_i(\omega) e^{-i\omega t}, \\
\hat{\mathbf{F}}_{bi}^{(+)}(t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \hat{b}_i(\omega) e^{-i\omega t}. \tag{6.38}
\end{aligned}$$

Usando o operador intensidade, [116, 144, 145], temos:

$$\hat{\mathbf{I}}_1(t_1) = \hat{\mathbf{F}}_1^{(-)}(t_1) \cdot \hat{\mathbf{F}}_1^{(+)}(t_1), \tag{6.39}$$

$$\hat{\mathbf{I}}_2(t_2) = \hat{\mathbf{F}}_2^{(-)}(t_2) \cdot \hat{\mathbf{F}}_2^{(+)}(t_2), \tag{6.40}$$

ou seja,

$$\begin{aligned}
\hat{\mathbf{I}}_1(t_1) &= \sum_{i=H,V} \sum_{j=H,V} \frac{1}{2} \{ \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(-)}(t_1 + \delta) \cdot \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(+)}(t_1 + \delta) + \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(-)}(t_1 + \delta) \cdot \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(+)}(t_1) \\
&\quad + \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(-)}(t_1) \cdot \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(+)}(t_1 + \delta) + \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(-)}(t_1) \cdot \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(+)}(t_1) \} \tag{6.41}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\hat{\mathbf{I}}_2(t_2) &= \sum_{i=H,V} \sum_{j=H,V} \frac{1}{2} \{ \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(-)}(t_2) \cdot \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(+)}(t_2) - \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(-)}(t_2) \cdot \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(+)}(t_2 - \delta) \\
&\quad - \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(-)}(t_2 - \delta) \cdot \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(+)}(t_2) + \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(-)}(t_2 - \delta) \cdot \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(+)}(t_2 - \delta) \}. \tag{6.42}
\end{aligned}$$

Finalmente, a probabilidade de detecção de coincidências após o divisor de feixes é dada por

$$P_{II}(t_1, t_2) = \langle \mathfrak{S} : \hat{\mathbf{I}}_1(t_1) \hat{\mathbf{I}}_2(t_2) : \rangle. \quad (6.43)$$

aqui usamos $:$ para indicar o ordenamento normal dos operadores criação e aniquilação e \mathfrak{S} para indicar o ordenamento temporal dos operadores. Assim,

$$\begin{aligned} P_{II}(t_1, t_2) = & \frac{1}{4} \sum_{i=H,V} \sum_{j=H,V} \\ & \{ \langle \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(-)}(t_1 + \delta) \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(-)}(t_2 - \delta) \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(+)}(t_2 - \delta) \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(+)}(t_1 + \delta) \rangle + \\ & + \langle \hat{\mathbf{F}}_{bi}^{(-)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_{aj}^{(-)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_{aj}^{(+)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_{bi}^{(+)}(t_1) \rangle + \\ & + \langle \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(-)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_{aj}^{(-)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_{aj}^{(+)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(+)}(t_1) \rangle + \\ & + \langle \hat{\mathbf{F}}_{bi}^{(-)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(-)}(t_2 - \delta) \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(+)}(t_2 - \delta) \hat{\mathbf{F}}_{bi}^{(+)}(t_1) \rangle - \\ & - \langle \hat{\mathbf{F}}_{ai}^{(-)}(t_1 + \delta) \hat{\mathbf{F}}_{bj}^{(-)}(t_2 - \delta) \hat{\mathbf{F}}_{aj}^{(+)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_{bi}^{(+)}(t_1) \rangle - \\ & - \langle \hat{\mathbf{F}}_{bi}^{(-)}(t_1) \hat{\mathbf{F}}_{aj}^{(-)}(t_2) \hat{\mathbf{F}}_{aj}^{(+)}(t_2 - \delta) \hat{\mathbf{F}}_{bi}^{(+)}(t_1 + \delta) \rangle \}. \end{aligned}$$

Após efetuarmos uma integração temporal em todos os tempos t_1 e t_2 , obtemos a seguinte contagem em coincidências para o caso com estado singleto, em um regime com dois e quatro fótons em um interferômetro de HOM:

$$\begin{aligned} N_c(\delta) = & \frac{E_p^2}{2} (X + X(\delta)) \\ & + \frac{E_p^4}{2} (3A + A(\delta)) \\ & + \frac{E_p^4}{4} \left(3\varepsilon + \varepsilon(\delta) + \varepsilon'(\delta) - \varepsilon''(\delta) \right), \end{aligned} \quad (6.44)$$

onde

$$X(\delta) = |\eta|^2 \iint d\omega_1 d\omega_2 |\Phi(\omega_1, \omega_2)|^2 e^{-i(\omega_1 - \omega_2)\delta}, \quad (6.45)$$

$$A(\delta) = |\eta|^4 \iiint d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 |\Phi(\omega_1, \omega_2)|^2 |\Phi(\omega'_1, \omega'_2)|^2 e^{i(\omega_1 - \omega_2)\delta}, \quad (6.46)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon'(\delta) &= |\eta|^4 \iiint d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \Phi^*(\omega_1, \omega'_1) \Phi^*(\omega'_2, \omega_2) \times \\ &\times \Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi(\omega'_1, \omega'_2) e^{i(\omega_1 - \omega_2)\delta}, \end{aligned} \quad (6.47)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon''(\delta) &= |\eta|^4 \iiint d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \Phi^*(\omega_1, \omega'_1) \Phi^*(\omega'_2, \omega_2) \times \\ &\times \Phi(\omega_1, \omega_2) \Phi(\omega'_1, \omega'_2) e^{i(\omega_1 - \omega'_2)\delta}, \end{aligned} \quad (6.48)$$

e $X = \eta^2$. A função A foi apresentada na Eq. (6.11) e ε na Eq. (6.12).

6.3.2 Resultados experimentais

A Fig. 6.7 mostra o esquema do interferômetro de Hong-Ou-Mandel. Testamos, experimentalmente, o cálculo do padrão de coincidências como função da potência do feixe de bombeamento no cristal. Usamos uma fonte laser formada por um amplificador (RegATM – Coherent) que produz pulsos com 200 fs de largura temporal e uma taxa de repetição de $N = 250$ KHz. Este laser amplifica os pulsos do laser de modos travados (MiraTM – Coherent), cuja repetição é de 76 MHz e opera com 795 nm de comprimento de onda. Pulsos de UV são produzidos via geração de segundo harmônico óptico em um cristal β -Borato de Bário (BBO) com 1mm de espessura e casamento de fase tipo I. A potência média de geração é de 150mW. O feixe é focalizado no cristal por uma lente com distância focal de 1.0m. Dada a alta energia por pulso, dois e quatro fótons em estado singleto são gerados, num processo de conversão paramétrica descendente de um e de dois fótons do feixe de bombeamento, simultaneamente. Fótons com a mesma frequência ($\omega_1 = \omega_2 \approx \frac{\omega_0^c}{2}$) são gerados na saída do cristal, formando um ângulo de 2.5° com o feixe de bombeamento. Estes fótons são selecionados por dois orifícios de 1.5 mm de diâmetro colocados nos caminhos do feixe gerado. Os pares de fótons são gerados em um estado singleto de polarização, conforme mostrado na referência [142]. Os pares de fótons são direcionados para um divisor de feixes 50/50 (BS), conforme mostrado na Fig. 6.7. Deslocando o divisor de feixes BS , com um motor de passo, podemos balancear os caminhos dos fótons 1

(*signal*) e 2 (*idler*), sem perder o alinhamento do interferômetro. Ambos os detectores $D1$ e $D2$ são fotodetectores de avalanche (Perkin-Elmer-SPCM-AQR-14) operando em modo de contagens de fótons e $F1$ e $F2$ são filtros de interferência colocados na frente destes, com 3.0 nm de largura à meia altura e centrados em 795 nm. A taxa de coincidências é medida por meio de circuitos com 3 ns de resolução temporal. Consideramos a distribuição espectral do pacote de onda dos fótons determinada pela distribuição dos filtros de interferência, porque a largura em frequência do processo de conversão paramétrica descendente é bem maior que a largura à meia altura dos filtros [148]. Considerando a transmissão dos filtros como uma gaussiana centrada em $\omega_1 \approx \frac{\omega_0^c}{2}$ e $\omega_2 \approx \frac{\omega_0^c}{2}$, podemos escrever a seguinte função espectral:

$$\Phi(\omega_1, \omega_2) = \Phi\left(\omega_1 = \frac{\omega_0^c}{2}, \omega_2 = \frac{\omega_0^c}{2}\right) f(\omega_1) f(\omega_2), \quad (6.49)$$

com

$$f(\omega) = \frac{1}{\sqrt{\Delta\omega_f} \sqrt{\pi}} \exp\left[-\frac{(\omega - \frac{\omega_0^c}{2})^2}{2\Delta\omega_f^2}\right]. \quad (6.50)$$

$\Delta\omega_f$ é a largura à meia altura dos filtros de interferência. Substituindo (6.49) em (6.44), temos a seguinte expressão para o número de coincidências na saída do interferômetro de HOM, para o caso com estados singletos:

$$\begin{aligned} N_c(\delta) &= \frac{E_p^2}{2} X_0 \left\{ 1 + e^{-(\Delta\omega_f)^2 \delta^2} \right\} \\ &+ \frac{E_p^4}{4} (2A_0 + \varepsilon_0) \left\{ 3 + e^{-(\Delta\omega_f)^2 \delta^2} \right\}, \end{aligned} \quad (6.51)$$

com $X_0 = X(0)$, $A_0 = A(0)$ e $\varepsilon_0 = \varepsilon(0)$. Os valores de X_0 e $(2A_0 + \varepsilon_0)$ podem ser obtidos experimentalmente, como mostraremos a seguir. Todas as grandezas teóricas são proporcionais a E_p^2 e temos a seguinte relação $E_p^2 = \frac{P}{N h \nu}$, onde N é a taxa de repetição do laser, ν é a frequência do feixe de bombeamento e h é a constante de Planck [143].

Podemos obter X_0 esboçando a contagem de um dos detectores na saída do interferômetro como função da potência média do feixe.

A probabilidade de detecção de um fóton é dada por [139]:

$$P(t_j) = \langle \hat{\mathbf{I}}(t_j) \rangle,$$

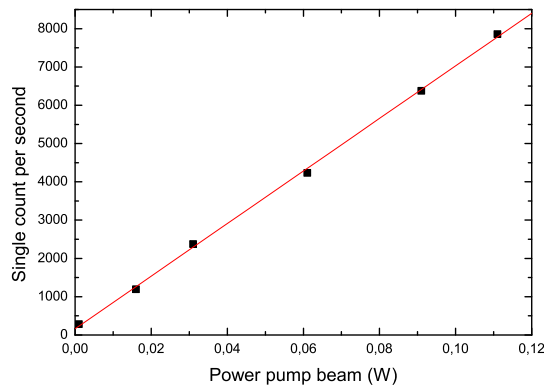


Figura 6.8: *Contagens simples no Interferômetro de Hong-Ou-Mandel. O tratamento experimental fornece uma reta com inclinação $(63.6 \pm 0.8) \times 10^3$ fótons/s-W. Assim, temos a eficiência do detector multiplicada por X_0 . Esta figura foi retirada da referência [144].*

com $j = 1, 2$. A probabilidade média de detecção de fótons é obtida integrando $P(t_j)$ em todos os tempos, como discutido anteriormente:

$$\begin{aligned} P_{1j} &= \int_{-\infty}^{\infty} P(t_j) dt_j = E_p^2 |\eta|^2 \iint d\omega_1 d\omega_2 |\Phi(\omega_1, \omega_2)|^2 = \\ &= E_p^2 X(0), \end{aligned} \quad (6.52)$$

onde usamos a condição de normalização $\langle \Psi | \Psi \rangle = 1$. Aqui, $E_p^2 X(0)$ é a fração de fótons do feixe de bombeamento que foram convertidos em dois fótons gêmeos. Quando consideramos a eficiência de geração α_j e a taxa de repetição do pulso N , temos a seguinte expressão para a contagem simples:

$$R_{1j} = N \alpha_j E_p^2 X_0 = \alpha_j X_0 \frac{P}{h\nu}. \quad (6.53)$$

A Fig. 6.8 mostra as contagens simples em termos da potência média do feixe. O tratamento dos dados fornece uma reta com inclinação $(63.6 \pm 0.8) \times 10^3$ fótons/s-W. Assim, obtemos a eficiência do detector multiplicado por X_0 .

A quantidade $2A_0 + \varepsilon_0$ é obtida da taxa de coincidências com um dos braços do interferômetro bloqueado (N_{cB}), como função da potência do feixe

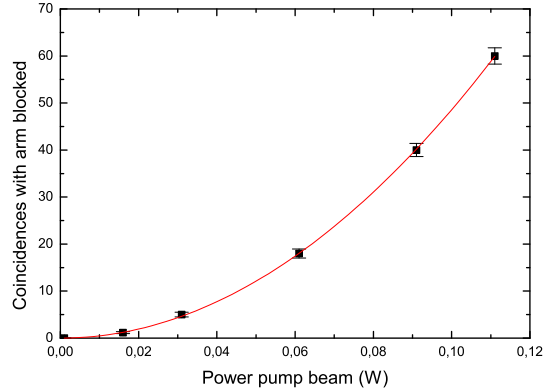


Figura 6.9: *Coincidências com um dos braços bloqueado no Interferômetro de Hong-Ou-Mandel, em função da potência média do feixe de bombeamento. A curva contínua fornece a dependência cP^d , onde $c = (4.9 \pm 0.2) \times 10^3$ fótons/s- W^2 e $d = 2.00 \pm 0.02$ (veja Eq. (6.54)). Determinando a quantidade c podemos obter a quantidade $2A_0 + \varepsilon_0$ multiplicada pelas eficiências dos detectores. Esta figura foi retirada da referência [144].*

de bombeamento. A taxa de coincidência teórica para este caso é obtida considerando a chegada de dois fótons do braço a ou b no divisor de feixes. Usando uma das funções de correlação, (6.44) ou (6.44), obtemos:

$$N_{cB} = N^2 E_p^4 \alpha_1 \alpha_2 (2A_0 + \varepsilon_0) = \alpha_1 \alpha_2 (2A_0 + \varepsilon_0) \left(\frac{P}{h\nu}\right)^2. \quad (6.54)$$

A Fig. 6.9 mostra a taxa de coincidência com um dos braços bloqueados. A curva contínua mostra o tratamento teórico dos dados que fornecem uma dependência do tipo cP^d , onde $c = (4.9 \pm 0.2) \times 10^3$ fótons/s- W^2 e $d = 2.00 \pm 0.02$ (veja Eq. (6.54)). Da constante c podemos obter a quantidade $2A_0 + \varepsilon_0$ multiplicada pelas eficiências dos detectores.

A eficiência média de detecção - que considera a transmissão dos filtros, a área dos orifícios e o acoplamento das lentes do detectores -, pode ser obtida usando a taxa de coincidência na saída do interferômetro de HOM, quando se tem um par de fótons, ou seja

$$\begin{aligned} N_c(\delta) &= N \frac{E_p^2}{2} X_0 \alpha_1 \alpha_2 \left\{ 1 + e^{-(\Delta\omega_f)^2 \delta^2} \right\} \\ &= \left(\frac{P}{h\nu}\right) \frac{X_0}{2} \alpha_1 \alpha_2 \left\{ 1 + e^{-(\Delta\omega_f)^2 \delta^2} \right\}. \end{aligned} \quad (6.55)$$

Usamos os resultados do interferômetro presentes na Fig. 6.10. No caso com 1mW, temos um regime com apenas um par de fótons gêmeos. Para simplificar os cálculos, consideraremos a eficiência média dos dois detectores iguais $\alpha_1 = \alpha_2$. As quantidades E_p^2 e $\alpha_i X_0$ na Eq. (6.55) são obtidas da potência média do feixe e das contagens simples médias dos detectores, respectivamente. Então, o esboço teórico da Fig. 6.10.a com Eq. (6.55) fornece a eficiência de detecção $\alpha_i = (9.0 \pm 0.6) \times 10^{-3}$, que é usada para obtenção experimental de X_0 e $2A_0 + \varepsilon_0$.

Finalmente, a Fig. 6.10 mostra as taxas de coincidências em termos das potências médias do feixe de bombeamento. A curva contínua é a curva derivada da Eq. (6.51).

Podemos, agora, deduzir a dependência da visibilidade do padrão de coincidências em termos de E_p^2 (proporcional à potência média do feixe de bombeamento). A visibilidade é dada pela seguinte expressão [139]:

$$v = \frac{N_c(0) - N_c(\infty)}{N_c(\infty)}, \quad (6.56)$$

e, assim,

$$v = \frac{\frac{E_p^2 X_0}{2} + \frac{E_p^4}{4}(2A_0 + \varepsilon_0)}{\frac{E_p^2 X_0}{2} + \frac{3E_p^4}{4}(2A_0 + \varepsilon_0)} = 1 - \left(\frac{3}{2} + \frac{X_0}{E_p^2(2A_0 + \varepsilon_0)} \right)^{-1}, \quad (6.57)$$

onde $N_c(\infty)$ é o caso em que o atraso temporal entre um braço e outro é muito maior que o comprimento de coerência entre os fótons. A curva teórica presente na Fig. 6.11 é obtida da Eq. (6.57).

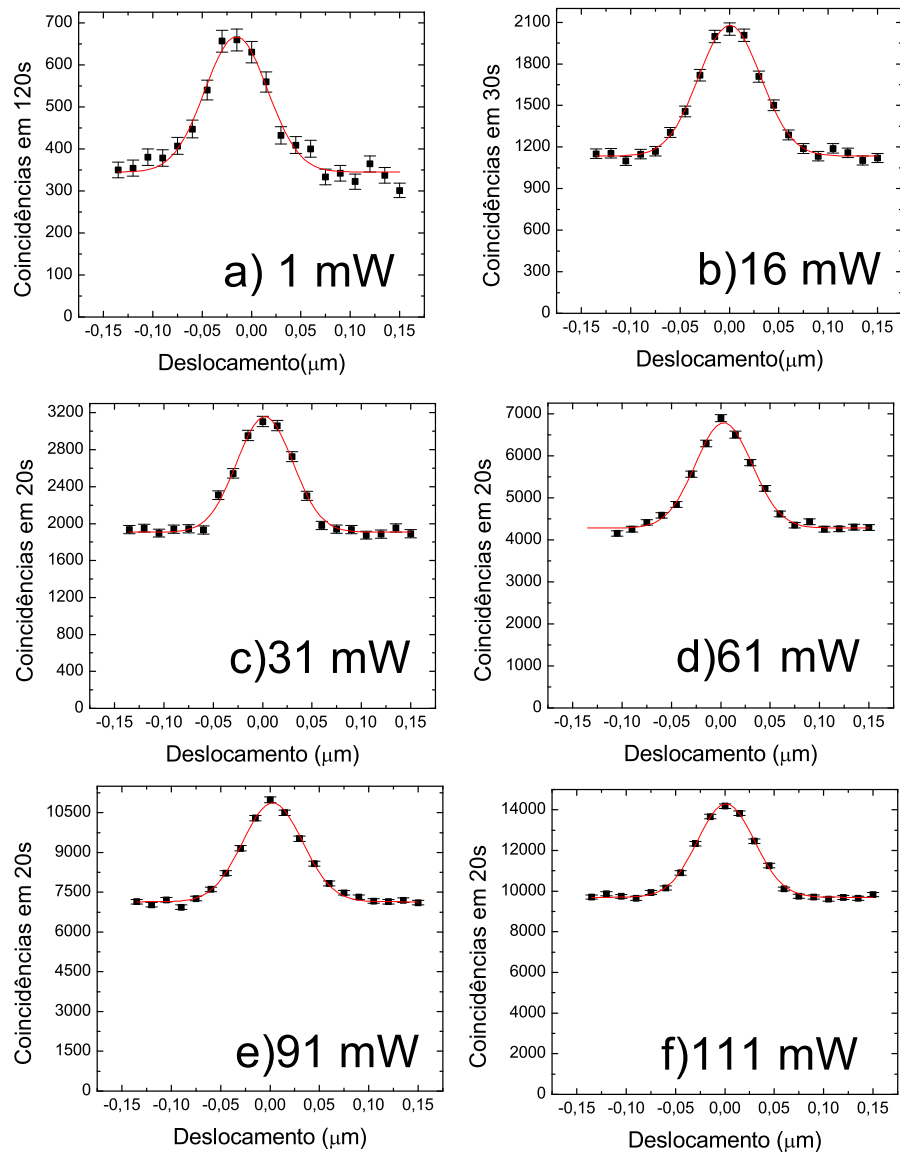


Figura 6.10: *Resultados Experimentais do Interferômetro de Hong-Ou-Mandel usando estados singletos para diferentes potências médias do feixe de bombeamento: a) 1 mW, b) 16 mW, c) 31 mW, d) 61 mW, e) 91 mW and f) 111 mW. As curvas são derivadas da Eq. (6.51). Esta figura foi retirada da referência [144].*

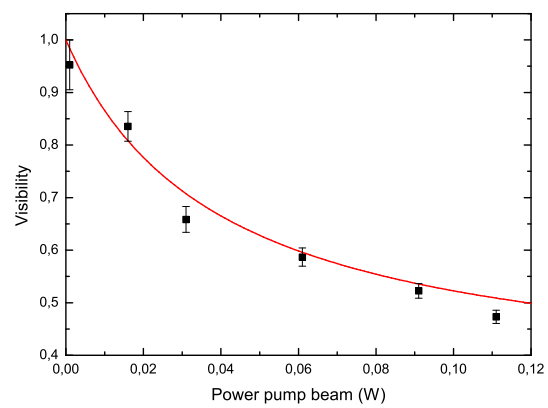


Figura 6.11: *Visibilidade do padrão de interferência do Interferômetro de Hong-Ou-Mandel em função da potência média. A curva teórica é obtida da Eq. (6.57) (curva contínua). Esta figura foi retirada da referência [144].*

Capítulo 7

Estados com Quatro Fótons Gerados por Cristais Não-lineares com Inversão Periódica de Domínio

7.1 Dedução dos estados com quatro fótons gerados por cristais não-lineares com inversão periódica de domínio

Considerando o estado geral da Eq. (4.10), para um caso em que temos a geração de dois e quatro fótons gêmeos e um regime com cristal com inversão periódica de domínios, por exemplo o PPKTP, temos o seguinte estado:

$$\begin{aligned} |\Psi\rangle &= M|\text{vac}\rangle + \sum_{s_1, s_2} \eta \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 \Phi_p(\vec{k}_1, \vec{k}_2) |\vec{k}_1, s_1\rangle |\vec{k}_2, s_2\rangle + \\ &+ \sum_{s_1, s_2, s'_1, s'_2} \frac{\eta^2}{2} \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 \int d\vec{k}'_1 \int d\vec{k}'_2 \Phi_p(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \Phi_p(\vec{k}'_1, \vec{k}'_2) \times \\ &\quad \times |\vec{k}_1, s_1\rangle |\vec{k}_2, s_2\rangle |\vec{k}'_1, s'_1\rangle |\vec{k}'_2, s'_2\rangle, \end{aligned} \quad (7.1)$$

onde $\Phi_p(\vec{k}_i, \vec{k}_j)$ é a função correlação entre os fótons gêmeos com vetor de onda \vec{k}_i e \vec{k}_j e o ket $|\vec{k}_i, s_i\rangle$ representa um fóton com vetor de onda \vec{k}_i e polarização s_i e η^2 é a probabilidade de geração de fótons gêmeos via CPD. A função correlação apresenta a seguinte normalização:

$$\int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 |\Phi_p(\vec{k}_1, \vec{k}_2)|^2 = 1. \quad (7.2)$$

Faremos estudo semelhante ao das primeiras secções do capítulo 6. Utilizaremos orifícios no caminho dos feixes gerados, de forma que os vetores de ondas serão dados por $k_i = n_i \omega_i / c$. Evidenciaremos a dependência do estado em relação ao campo de bombeamento E_p e a fração de fótons do feixe de bombeamento, que são convertidos (η), de forma que podemos escrever o estado acima, Eq. (7.1), da seguinte forma:

$$|\Psi\rangle = M|\text{vac}\rangle + \eta E_p |\Phi_1\rangle_p + \eta^2 E_p^2 |\Phi_2\rangle_p, \quad (7.3)$$

onde $\langle\Psi|\Psi\rangle = 1$, $\langle\Phi_i|\Phi_j\rangle = \delta_{ij}$ ($i, j = 1, 2$), E_p^2 é o número de fótons que chegam ao cristal, M é uma constante de normalização do estado $M \gg \eta E_p$ ($M \lesssim 1$), ηE_p é a amplitude de probabilidade de um fóton do feixe de bombeamento ser convertido no processo de conversão paramétrica descendente,

$$|\Phi_1\rangle_p = \sum_{s_1, s_2} \int d\omega_1 d\omega_2 \Phi_p(\omega_1, \omega_2) |\omega_1, s_1\rangle |\omega_2, s_2\rangle \quad (7.4)$$

e

$$\begin{aligned} |\Phi_2\rangle_p &= \sum_{s_1, s_2, s'_1, s'_2} \frac{1}{2} \int d\omega_1 d\omega_2 d\omega'_1 d\omega'_2 \Phi_p(\omega_1, \omega_2) \Phi_p(\omega'_1, \omega'_2) \times \\ &\times |\omega_1, s_1\rangle |\omega_2, s_2\rangle |\omega'_1, s'_1\rangle |\omega'_2, s'_2\rangle. \end{aligned} \quad (7.5)$$

Aqui, o ket $|\omega_i, s_i\rangle$ representa o estado de Fock de um fóton com frequência ω_i e a polarização s_i do fóton, e a função correlação, para o caso com cristal não-linear com inversão periódica de domínios, apresenta a seguinte normalização:

$$\int d\omega_1 d\omega_2 |\Phi_p(\omega_1, \omega_2)|^2 = 1. \quad (7.6)$$

7.2 Relação entre a potência do feixe de bombeamento e a geração do estado com quatro fótons em cristais não-lineares periódicos

A Fig. 7.1 mostra o aparato utilizado para verificar a dependência das contagens diversas com a potência do laser. Posteriormente, este aparato foi utilizado para verificação da transferência do espectro angular para estados com quatros fótons.

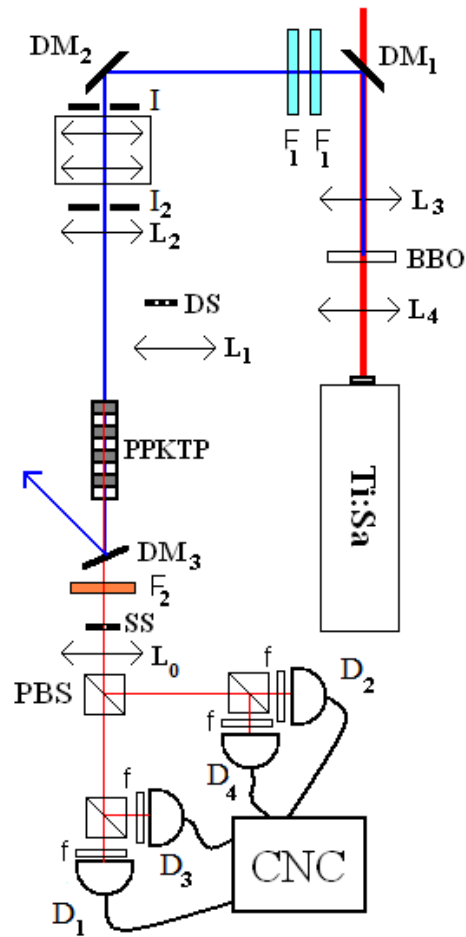


Figura 7.1: *Aparato experimental para verificar a dependência das diversas contagens (simples, duplas, triplas e quádruplas) com relação à potência do feixe de bombeamento - Esquema experimental: laser pulsado de modos travados de titânio safira Ti:Sa; Sistema de geração de segundo harmônico óptico, duas lentes L_3 e L_4 com $f=5\text{cm}$ e um cristal BBO com 2mm de espessura; Espelhos dicróicos DM_1 , DM_2 e DM_3 separam o pulso azul do infravermelho; os filtros azuis F_1 ; o sistema expensor de feixe composto por duas lentes e duas irises I_1 e I_2 melhoram a qualidade espacial e controlam a potência do feixe; o feixe é focalizado no cristal PPKTP tipo II de 10mm de comprimento por uma lente L_2 com $f=1\text{m}$; usamos um filtro vermelho F_2 ; na posição SS colocamos, inicialmente, um orifício circular com 3mm de diâmetro e em seguida uma fenda simples com largura de $200\mu\text{m}$; uma lente L_0 focaliza todo o campo transmitido pela fenda SS nos detectores D_1 , D_2 , D_3 e D_4 ; os detectores apresentam filtros passa banda f com largura de 40nm ; um divisor de feixes polarizador PBS e outros dois divisores comuns separam os quatro fótons gerados; as contagens recolhidas pelos detectores são analisadas por um sistema de contagens em coincidências com resolução de 1ns ; DS é uma fenda dupla com largura $100\mu\text{m}$ e distância entre as fendas de $200\mu\text{m}$; e a lente L_1 tem $f=25\text{cm}$.*

O aparato é semelhante ao usado para as medidas com BBO (Fig. 6.2). Ao observarmos os estado inicial gerado pelo cristal PPKTP Eq. (7.3) e compararmos com o estado inicial gerado pelo cristal BBO Eq. (6.3), vemos as mesmas dependências implicando nos mesmos resultados. A diferença será determinada na magnitude da susceptibilidade não-linear efetiva cada material. Desta forma, teremos as seguintes dependências das contagens diversas com a potência do feixe de bombeamento:

7.2.1 Contagens simples de fótons

O cálculo, aqui, é semelhante ao realizado na subsecção 6.2.1, ou seja:

$$C_1 = a_p P + b_p P^2, \quad (7.7)$$

onde a constante a_p está relacionada com a probabilidade de geração de fótons gêmeos e b_p está relacionada com a probabilidade de conversão simultânea de dois fótons do feixe de bombeamento em um cristal com inversão periódica de domínios.

A Fig. 7.2 mostra a dependência das contagens simples em relação à potência do laser de bombeamento.

7.2.2 Coincidências duplas de fótons

O cálculo, aqui, é semelhante ao realizado na subsecção 6.2.2, onde obtivemos, para o caso com mesma polarização:

$$C_{2A} = \text{const}_p P^2 \quad (7.8)$$

e

$$C_{2B} = a'_p P + b'_p P^2, \quad (7.9)$$

para o caso com polarização oposta.

A Fig. 7.3 mostra a dependência das coincidências duplas em relação à potência do laser de bombeamento. As contagens $D1D3$ e $D2D4$ têm mesma polarização, enquanto as contagens restantes têm polarização oposta. Observe que $D1D3$ e $D2D4$ têm dependência quadrática com a potência, enquanto o restante tem dependência quase linear.

7.2.3 Coincidências triplas de fótons

O cálculo semelhante ao feito na subsecção 6.2.3, no qual obtivemos:

$$C_3 = \text{const}'_p P^2. \quad (7.10)$$

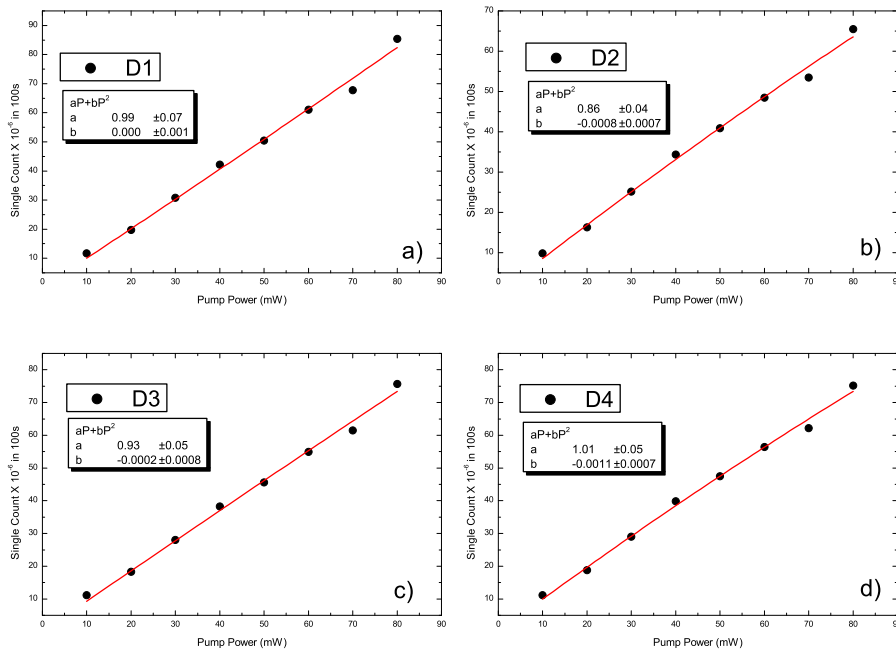


Figura 7.2: Contagens simples em função da potência usando cristal PPKTP. As medidas foram feitas através da montagem experimental da Fig. 7.1. As barras de erro têm o tamanho dos pontos.

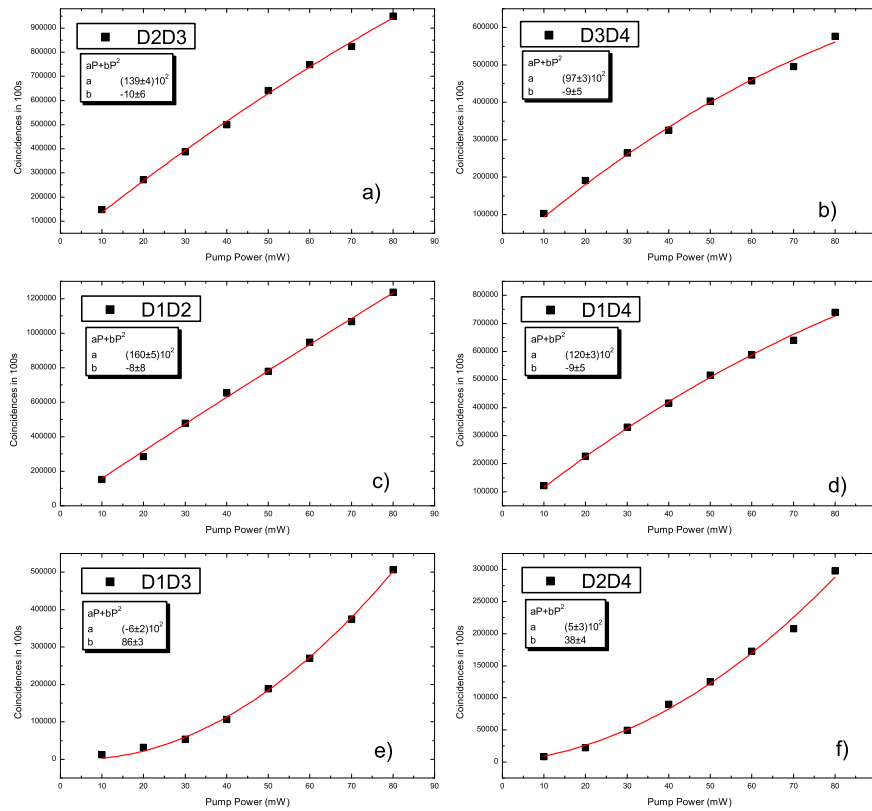


Figura 7.3: *Coincidência duplas em função da potência usando cristal PPKTP. As medidas foram feitas através da montagem experimental da Fig. 7.1. As barras de erro têm o tamanho dos pontos.*

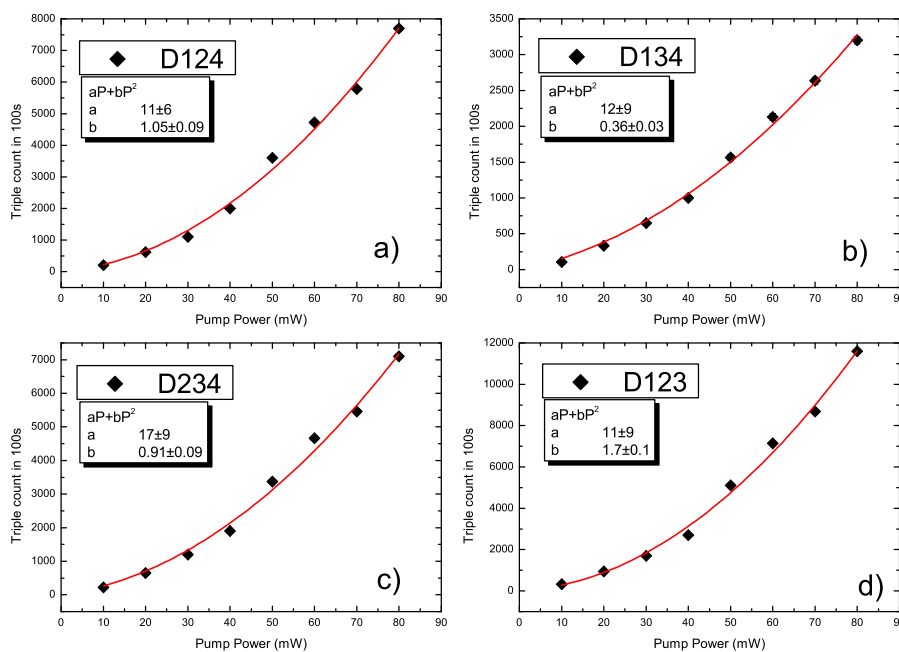


Figura 7.4: *Coincidências triplas em função da potência usando cristal PPKTP. As medidas foram feitas através da montagem experimental da Fig. 7.1. As barras de erro têm o tamanho dos pontos.*

A Fig. 7.4 mostra a dependência das coincidências triplas com a potência do laser de bombeamento.

7.2.4 Coincidências quádruplas de fótons

O cálculo semelhante ao feito na subsecção 6.2.4, em que obtivemos:

$$C_4 = \text{const}''_p P^2. \quad (7.11)$$

A Fig. 7.5 mostra a dependência das contagens simples com a potência do laser de bombeamento.

Até aqui, estudamos as dependências entre as diversas contagens (simples, dupla, tripla e quádrupla) com relação à potência do laser de bombeamento. Registramos um máximo de $4,5 \times 10^{-4}$ contagens quádruplas por segundo por miliwatt para o cristal não-linear com um único período BBO com 5mm

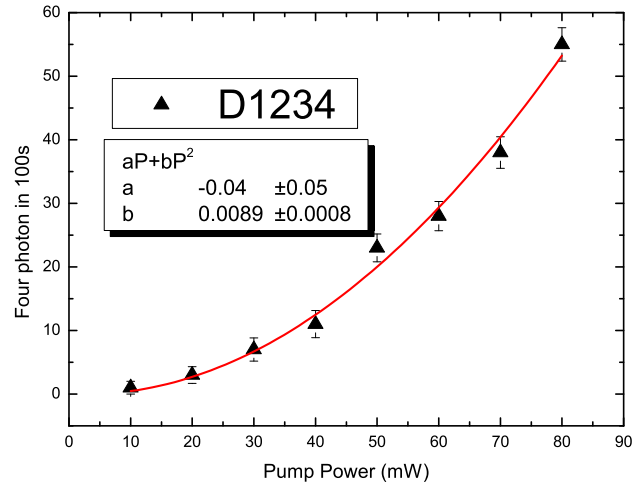


Figura 7.5: *Coincidências quádruplas em função da potência usando cristal PPKTP. As medidas foram feitas através da montagem experimental da Fig. 7.1.*

de espessura e $6,25 \times 10^{-2}$ contagens quádruplas por segundo por miliwatt para o cristal não-linear com inversão periódica de domínios PPKTP 10mm de comprimento. Em ambos casos, tínhamos um orifício circular com 3mm de raio no plano de detecção, um filtro de interferência de 40nm e as mesmas condições experimentais. Posteriormente, sem o uso de orifício, obtivemos 52 contagens quádruplas por segundo para 100mW usando o cristal PPKTP. A maior eficiência de geração do cristal PPKTP se deve principalmente à magnitude da susceptibilidade não-linear de segunda ordem efetiva.

7.3 Transferência do espectro angular para estados com quatro fótons gerados por cristais não-lineares com inversão periódica de domínio

7.3.1 Teoria

Observamos, teorica e experimentalmente, na secção 5.3, que a transferência do espectro angular usando cristais com inversão periódica de domínios (PPKTP) se dá de forma semelhante ao caso com uma cristal não-linear com um único período.

Avaliaremos, agora, a transferência do espectro angular para um estado contendo dois e quatro fótons gerados de um e dois fótons do feixe de bombeamento, respectivamente. Como relatado na seção anterior, temos o estado dado pela Eq. (7.1):

$$\begin{aligned}
 |\Psi\rangle &= M|\text{vac}\rangle + \sum_{s_1, s_2} \eta \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 \Phi_p(\vec{k}_1, \vec{k}_2) |\vec{k}_1, s_1\rangle |\vec{k}_2, s_2\rangle + \\
 &+ \sum_{s_1, s_2, s_3, s_4} \frac{\eta^2}{2} \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 \int d\vec{k}_3 \int d\vec{k}_4 \Phi_p(\vec{k}_1, \vec{k}_2) \Phi_p(\vec{k}_3, \vec{k}_4) \times \\
 &\times |\vec{k}_1, s_1\rangle |\vec{k}_2, s_2\rangle |\vec{k}_3, s_3\rangle |\vec{k}_4, s_4\rangle.
 \end{aligned} \tag{7.12}$$

Aqui, mudaremos a notação, fazendo $\vec{k}'_1 = \vec{k}_3$ e $\vec{k}'_2 = \vec{k}_4$, além de $s'_1 = s_3$ e $s'_2 = s_4$. $\Phi(\vec{k}_i, \vec{k}_j)$ é a função correlação entre os fótons gêmeos com vetor de onda \vec{k}_i e \vec{k}_j e o ket $|\vec{k}_i, s_i\rangle$ representa um fóton com vetor de onda \vec{k}_i e polarização s_i e

$$\int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 |\Phi_p(\vec{k}_1, \vec{k}_2)|^2 = 1. \tag{7.13}$$

Verificamos anteriormente, secção 5.3, que a função correlação dos fótons $\Phi(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ é dada pelo espectro angular do fóton de bombeamento que gerou o par de fótons gêmeos $v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2)$, com q_i a componente transversal do vetor \vec{k}_i . Considerando as limitações impostas pelas franjas de Maker [131], (vide

seção 5.3). Assim,

$$\begin{aligned}
|\Psi\rangle &= M|\text{vac}\rangle + \sum_{s_1, s_2} \eta \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) |\vec{k}_1, s_1\rangle |\vec{k}_2, s_2\rangle + \\
&+ \sum_{s_1, s_2, s_3, s_4} \frac{\eta^2}{2} \int d\vec{k}_1 \int d\vec{k}_2 \int d\vec{k}_3 \int d\vec{k}_4 v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) v(\vec{q}_3 + \vec{q}_4) \times \\
&\quad \times |\vec{k}_1, s_1\rangle |\vec{k}_2, s_2\rangle |\vec{k}_3, s_3\rangle |\vec{k}_4, s_4\rangle.
\end{aligned} \tag{7.14}$$

Considerando as componentes transversais da função correlação dos fótons, temos:

$$\begin{aligned}
|\Psi\rangle &= M|\text{vac}\rangle + \sum_{s_1, s_2} \eta \int d\vec{q}_1 \int d\vec{q}_2 v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) |\vec{q}_1, s_1\rangle |\vec{q}_2, s_2\rangle + \\
&+ \sum_{s_1, s_2, s_3, s_4} \frac{\eta^2}{2} \int d\vec{q}_1 \int d\vec{q}_2 \int d\vec{q}_3 \int d\vec{q}_4 v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) v(\vec{q}_3 + \vec{q}_4) \times \\
&\quad \times |\vec{q}_1, s_1\rangle |\vec{q}_2, s_2\rangle |\vec{q}_3, s_3\rangle |\vec{q}_4, s_4\rangle,
\end{aligned} \tag{7.15}$$

onde s_i carrega a informação de polarização do fóton q_i .

Consideremos o caso em que há a detecção de quatro fótons com polarizações opostas aos pares. Exploraremos a indistinguibilidade dos pares de fótons, isto é, o par de gêmeos representados pelos vetores q_1 e q_2 têm as mesmas características do par de fótons representados por q_3 e q_4 .

Para avaliar a transferência do espectro angular usando estados com quatro fótons, devemos avaliar a seguinte função de correlação:

$$\begin{aligned}
C_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) &= \sum_{s_1, s_2, s_3, s_4} \langle \Psi | \hat{E}_1^{(-)}(\vec{r}_1) \hat{E}_2^{(-)}(\vec{r}_2) \hat{E}_3^{(-)}(\vec{r}_3) \hat{E}_4^{(-)}(\vec{r}_4) \times \\
&\quad \times \hat{E}_1^{(+)}(\vec{r}_1) \hat{E}_2^{(+)}(\vec{r}_2) \hat{E}_3^{(+)}(\vec{r}_3) \hat{E}_4^{(+)}(\vec{r}_4) | \Psi \rangle.
\end{aligned} \tag{7.16}$$

que pode ser escrita da seguinte forma:

$$C_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) = \sum_{s_1, s_2, s_3, s_4} |G_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4)|^2 \tag{7.17}$$

onde $G_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4)$ é a amplitude de probabilidade de detecção dos quatro fótons no plano de detecção, nas posições transversais \vec{r}_1 , \vec{r}_2 , \vec{r}_3 e \vec{r}_4 , respectivamente.

$$G_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) = \hat{E}_1^{(+)}(\vec{r}_1) \hat{E}_2^{(+)}(\vec{r}_2) \hat{E}_3^{(+)}(\vec{r}_3) \hat{E}_4^{(+)}(\vec{r}_4) | \Psi \rangle, \tag{7.18}$$

ou seja,

$$\begin{aligned}
G_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) &= \\
&= E^{(+)}(\vec{r}'_1)E^{(+)}(\vec{r}'_2)E^{(+)}(\vec{r}'_3)E^{(+)}(\vec{r}'_4)|\Psi\rangle \\
&= \frac{\eta^2}{2} \int \int \int \int \int \int \int \int d\vec{q}'_1 d\vec{q}'_2 d\vec{q}'_3 d\vec{q}'_4 d\vec{q}_1 d\vec{q}_2 d\vec{q}_3 d\vec{q}_4 v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) \times \\
&\times v(\vec{q}_3 + \vec{q}_4) \exp \left[i(\vec{q}'_1 \cdot \vec{\rho}'_1 + \sqrt{k_1'^2 - \rho_1'^2} z_1'') \right] \times \\
&\times \exp \left[i(\vec{q}'_2 \cdot \vec{\rho}'_2 + \sqrt{k_2'^2 - \rho_2'^2} z_2'') \right] \times \\
&\times \exp \left[i(\vec{q}'_3 \cdot \vec{\rho}'_3 + \sqrt{k_3'^2 - \rho_3'^2} z_3'') \right] \times \\
&\times \exp \left[i(\vec{q}'_4 \cdot \vec{\rho}'_4 + \sqrt{k_4'^2 - \rho_4'^2} z_4'') \right] \times \\
&\times \hat{a}(\vec{q}'_1) \hat{a}(\vec{q}'_2) \hat{a}(\vec{q}'_3) \hat{a}(\vec{q}'_4) \hat{a}^\dagger(\vec{q}_1) \hat{a}^\dagger(\vec{q}_2) \hat{a}^\dagger(\vec{q}_3) \hat{a}^\dagger(\vec{q}_4) |\text{vac}\rangle. \tag{7.19}
\end{aligned}$$

Observe que devemos avaliar o comutador

$$[\hat{a}(\vec{q}'_1) \hat{a}(\vec{q}'_2) \hat{a}(\vec{q}'_3) \hat{a}(\vec{q}'_4) , \hat{a}^\dagger(\vec{q}_1) \hat{a}^\dagger(\vec{q}_2) \hat{a}^\dagger(\vec{q}_3) \hat{a}^\dagger(\vec{q}_4)]. \tag{7.20}$$

O valor deste comutador foi deduzido no apêndice e é dado pela expressão (A.4).

Note que apenas as funções Delta de Dirac sem operadores contribuem com valor não nulo para a amplitude de probabilidade. Os outros termos implicam em operadores destruição aniquilando o estado de vácuo. Substituindo (A.4), obtemos:

$$\begin{aligned}
G_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) &= \\
&= \frac{\eta^2}{2} \int \int \int \int \int \int \int \int d\vec{q}'_1 d\vec{q}'_2 d\vec{q}'_3 d\vec{q}'_4 d\vec{q}_1 d\vec{q}_2 d\vec{q}_3 d\vec{q}_4 v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2) \times \\
&\times v(\vec{q}_3 + \vec{q}_4) e^{i(\vec{q}'_1 \cdot \vec{\rho}'_1 + \sqrt{k_1'^2 - \rho_1'^2} z_1'')} e^{i(\vec{q}'_2 \cdot \vec{\rho}'_2 + \sqrt{k_2'^2 - \rho_2'^2} z_2'')} \times \\
&\times e^{i(\vec{q}'_3 \cdot \vec{\rho}'_3 + \sqrt{k_3'^2 - \rho_3'^2} z_3'')} e^{i(\vec{q}'_4 \cdot \vec{\rho}'_4 + \sqrt{k_4'^2 - \rho_4'^2} z_4'')} \times \\
&\times \{ \delta(\vec{q}_1 - \vec{q}'_1) \delta(\vec{q}_2 - \vec{q}'_2) \delta(\vec{q}_3 - \vec{q}'_3) \delta(\vec{q}_4 - \vec{q}'_4) + \dots \} |\text{vac}\rangle. \tag{7.21}
\end{aligned}$$

As funções Delta de Dirac presentes na Eq. (A.4) produzem seis tipos de produto de função $v(\vec{q}_i + \vec{q}_j)$, que se repetem aos pares, de modo que G_4

adquire a seguinte forma:

$$\begin{aligned}
G_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) &= \\
&= 8 \frac{\eta^2}{2} \int \int \int \int d\vec{q}_1 d\vec{q}_2 d\vec{q}_3 d\vec{q}_4 e^{i(\vec{q}_1 \cdot \vec{\rho}_1 + \sqrt{k_1^2 - \rho_1^2} z_1)} \times \\
&\times e^{i(\vec{q}_2 \cdot \vec{\rho}_2 + \sqrt{k_2^2 - \rho_2^2} z_2)} e^{i(\vec{q}_3 \cdot \vec{\rho}_3 + \sqrt{k_3^2 - \rho_3^2} z_3)} e^{i(\vec{q}_4 \cdot \vec{\rho}_4 + \sqrt{k_4^2 - \rho_4^2} z_4)} \times \\
&\times \{v(\vec{q}_1 + \vec{q}_2)v(\vec{q}_3 + \vec{q}_4) + v(\vec{q}_1 + \vec{q}_3)v(\vec{q}_2 + \vec{q}_4) + \\
&+ v(\vec{q}_1 + \vec{q}_4)v(\vec{q}_2 + \vec{q}_3)\} |\text{vac}\rangle. \tag{7.22}
\end{aligned}$$

Restringindo-se ao caso da aproximação paraxial, $|\vec{\rho}| \ll |\vec{r}|$, podemos avaliar a transformada de Fourier da expressão (7.22), para obtermos:

$$\begin{aligned}
G_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) &= \\
&= 4\eta^2 \int \int d\vec{\rho}_{12} d\vec{\rho}_{34} W(\vec{\rho}_{12}) W(\vec{\rho}_{34}) \times \\
&\times \exp \left[-i \left(\frac{|\vec{k}_0|}{2Z_{12}} |\vec{R}_{12} - \vec{\rho}_{12}|^2 \frac{|\vec{k}_0|}{2Z_{34}} |\vec{R}_{34} - \vec{\rho}_{34}|^2 \right) \right] |\text{vac}\rangle \\
&+ 4\eta^2 \int \int d\vec{\rho}_{13} d\vec{\rho}_{24} W(\vec{\rho}_{13}) W(\vec{\rho}_{24}) \times \\
&\times \exp \left[-i \left(\frac{|\vec{k}_0|}{2Z_{13}} |\vec{R}_{13} - \vec{\rho}_{13}|^2 \frac{|\vec{k}_0|}{2Z_{24}} |\vec{R}_{24} - \vec{\rho}_{24}|^2 \right) \right] |\text{vac}\rangle \\
&+ 4\eta^2 \int \int d\vec{\rho}_{14} d\vec{\rho}_{23} W(\vec{\rho}_{14}) W(\vec{\rho}_{23}) \times \\
&\times \exp \left[-i \left(\frac{|\vec{k}_0|}{2Z_{14}} |\vec{R}_{14} - \vec{\rho}_{14}|^2 \frac{|\vec{k}_0|}{2Z_{23}} |\vec{R}_{23} - \vec{\rho}_{23}|^2 \right) \right] |\text{vac}\rangle, \tag{7.23}
\end{aligned}$$

onde

$$\frac{1}{Z_{ij}} = \frac{|k_i|}{|k_0|} \frac{1}{z_i} + \frac{|k_j|}{|k_0|} \frac{1}{z_j} \tag{7.24}$$

$$\vec{R}_{ij} = \frac{Z_{ij}}{z_i} \frac{|k_i|}{|k_0|} \vec{\rho}_i + \frac{Z_{ij}}{z_j} \frac{|k_j|}{|k_0|} \vec{\rho}_j = \frac{1}{\mu_i} \vec{\rho}_i + \frac{1}{\mu_j} \vec{\rho}_j \tag{7.25}$$

e $W(\vec{\rho}_{ij})$ é a transformada de Fourier de $v(\vec{q}_i + \vec{q}_j)$, que é a amplitude do feixe de bombeamento em $z=0$.

A integral, na expressão (7.23), descreve o produto de duas propagações do espectro angular das funções $W(\vec{\rho}_{ij})$ e $W(\rho_{kl})$, onde $W(\vec{\rho}_{ij})$ é oriunda da propagação de $z=0$ para $z = Z_{ij}$ e $W(\rho_{kl})$ da propagação de $z = 0$ para $z = Z_{kl}$.

Na aproximação paraxial [117, 118] (secção 4.2), as coincidências serão dadas por:

$$\begin{aligned}
C_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) &= |G_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4)|^2 \\
&= \text{const} \times \{ |W(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34})|^2 + \\
&+ |W(\vec{R}_{13}; \vec{Z}_{13})W(\vec{R}_{24}; \vec{Z}_{24})|^2 + |W(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23})|^2 + \\
&+ W^*(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W^*(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34})W(\vec{R}_{13}; \vec{Z}_{13})W(\vec{R}_{24}; \vec{Z}_{24}) + \\
&+ W^*(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W^*(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34})W(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23}) + \\
&+ W^*(\vec{R}_{13}; \vec{Z}_{13})W^*(\vec{R}_{24}; \vec{Z}_{24})W(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34}) + \\
&+ W^*(\vec{R}_{13}; \vec{Z}_{13})W^*(\vec{R}_{24}; \vec{Z}_{24})W(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23}) + \\
&+ W^*(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W^*(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23})W(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34}) + \\
&+ W^*(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W^*(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23})W(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23}) \}.
\end{aligned} \tag{7.26}$$

Os módulos quadrados têm a mesma contribuição que é a intensidade do campo de bombeamento ao quadrado. Observe que temos termos cruzados, como $W^*(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W^*(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34})W(\vec{R}_{13}; \vec{Z}_{13})W(\vec{R}_{24}; \vec{Z}_{24})$, indicando o emaranhamento entre pares de fótons gerados a partir de fótons diferentes do feixe de bombeamento. Observe a Fig. 6.1, o exemplo acima representa o caso em que o fóton de rótulo 1 está emaranhado com o fóton com rótulo 1' e o fóton 2 emaranhado com o fóton de rótulo 2', sendo que originalmente temos fóton 1 emaranhado com fóton 2 e fóton 1' emaranhado com fóton 2'. Isto ocorre devido à indistinguibilidade dos quatro fótons e pares casos em que estes chegam simultaneamente aos detectores. Explorando esta indistinguibilidade dos pares representados por \vec{q}_1 e \vec{q}_2 , com relação aos fótons representados por \vec{q}_3 e \vec{q}_4 e considerando que os detectores estão equidistantes, isto é, $z_1 = z_2 = z_3 = z_4$, obtemos, as seguintes igualdades:

$$\begin{aligned}
W^*(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W^*(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34})W(\vec{R}_{13}; \vec{Z}_{13})W(\vec{R}_{24}; \vec{Z}_{24}) &= \\
W^*(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W^*(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34})W(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23}) &= \\
W^*(\vec{R}_{13}; \vec{Z}_{13})W^*(\vec{R}_{24}; \vec{Z}_{24})W(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34}) &= \\
W^*(\vec{R}_{13}; \vec{Z}_{13})W^*(\vec{R}_{24}; \vec{Z}_{24})W(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23}) &= \\
W^*(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W^*(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23})W(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34}) &= \\
W^*(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W^*(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23})W(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23}) &= \\
|W(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34})|^2 = |W(\vec{R}_{13}; \vec{Z}_{13})W(\vec{R}_{24}; \vec{Z}_{24})|^2 = \\
|W(\vec{R}_{14}; \vec{Z}_{14})W(\vec{R}_{23}; \vec{Z}_{23})|^2.
\end{aligned} \tag{7.27}$$

Finalmente, a taxa de coincidências quádruplas na transferência do espectro

angular adquire a seguinte forma:

$$C_4(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3, \vec{r}_4) = \text{const} \times |W(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34})|^2. \quad (7.28)$$

onde $|W(\vec{R}_{12}; \vec{Z}_{12})W(\vec{R}_{34}; \vec{Z}_{34})|^2$ é a amplitude do campo que gerou o par de fótons com rótulo 1 e 2 multiplicado pela amplitude do campo que gerou o par de fótons com rótulos 3 e 4. A transferência do espectro angular ocorre similarmente ao caso com um par de fótons gêmeos, ou seja, as contagens em coincidências quádruplas são dadas pelo produto de duas amplitudes do feixe de bombeamento no plano de detecção.

Quando inserimos um obstáculo no feixe de bombeamento, as contagens em coincidências quádruplas serão dadas pelo quadrado do campo elétrico no plano de detecção dos fótons. Caso usássemos perfís diferentes teríamos resultados diferentes para diferentes configurações de detectores. Um exemplo, suponha que coloquemos os detectores 1 e 2 com o dobro da distância z dos detectores 3 e 4 e formássemos um padrão de fenda dupla, observaríamos uma padrão com o dobro do período quando variamos os detectores 1 e/ou 2 comparado com o quando variamos os detectores 3 e/ou 4.

7.3.2 Resultados experimentais

Usando o aparato experimental apresentado na Fig. 7.1, podemos comparar o perfil do laser com a taxa de coincidências medidas na transferência do espectro angular. A posição SS do aparato, inserimos uma fenda simples com $200\mu\text{m}$ de largura para analisar o padrão formado neste ponto (o plano de detecção dos fótons - SS). Quando varremos esta fenda simples é equivalente a varrer os dois detectores simultaneamente, ou seja, o padrão medido no perfil de bombeamento é o mesmo padrão medido para os fótons gêmeos. Variando a posição da fenda na direção paralela ao plano da mesa óptica, a relação entre a potência do campo de bombeamento e a contagem em coincidências quádruplas aparece como a que está representada na Fig. 7.6. Quando variamos a posição da fenda na direção perpendicular ao plano da mesa, a relação entre a potência do feixe de bombeamento e a contagem em coincidências quádruplas será dada como o representado na Fig. 7.7. Notamos que em ambas direções ocorreu a transferência do espectro transversal para os fótons gêmeos sem deslocamento do perfil.

Formamos a imagem de um fio metálico no plano de detecção usando o feixe de bombeamento e uma lente. O fio e a lente foram colocados em uma posição anterior ao cristal PPKTP, no aparato representado na Fig. 7.1. Em seguida, avaliamos o perfil formado pelo feixe de bombeamento no plano de detecção (posição SS) e a taxa de coincidências quádruplas, variando a

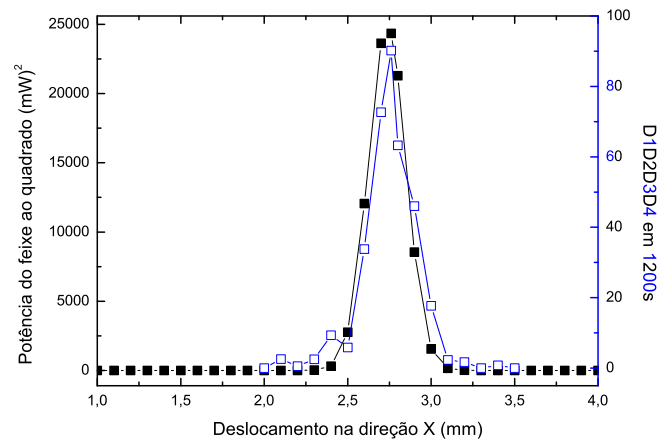


Figura 7.6: Comparação entre o Perfil do laser bombeador (simbolizado por quadrados cheios) e a taxa de coincidências (simbolizada por quadrados vazios), da transferência do espectro angular para pares de fótons gêmeos e PPKTP na direção horizontal ao plano da mesa.

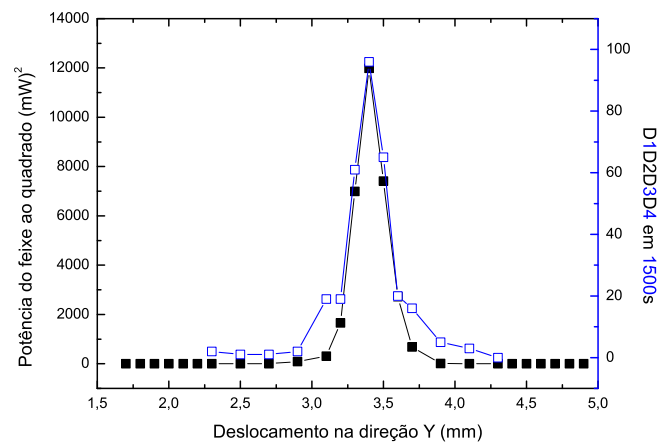


Figura 7.7: Comparação entre o Perfil do laser bombeador (simbolizado por quadrados cheios) e a taxa de coincidências (simbolizada por quadrados vazios), da transferência do espectro angular para pares de fótons gêmeos e PPKTP na direção vertical ao plano da mesa.

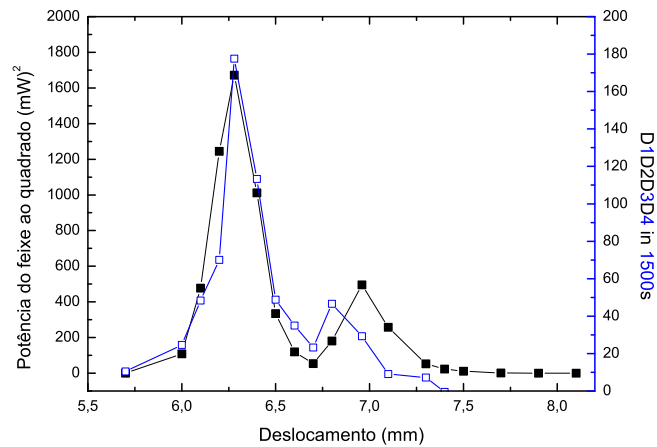


Figura 7.8: Comparação entre o Perfil do laser bombeador (simbolizado por quadrados cheios) e a taxa de coincidências (simbolizada por quadrados vazios), quando colocamos um fio e uma lente no feixe de bombeamento.

posição de uma fenda simples no plano detecção. O perfil formado e a taxa de coincidências quádruplas estão representados na Fig. 7.8.

Parte IV

**CONSIDERAÇÕES FINAIS E
APÊNDICE**

Capítulo 8

Conclusões e Perspectivas

Nesta tese, revisamos, sucintamente, alguns tópicos de Óptica Linear e Não-linear. Durante a segunda parte da tese, estudamos, experimental e teoricamente, a transferência do espectro angular para estados bifotônicos gerados via conversão paramétrica descendente, usando cristais não-lineares com um único período e cristais não-lineares com inversão periódica de domínio. Verificamos que, para ambos, ocorre a transferência do espectro angular. No entanto, quando utilizamos cristais com inversão periódica de domínio, é observado nos cálculos um estreitamento, em frequências, da função de geração seno cardinal, isto ocorre de forma que a função seno cardinal funciona como um filtro mais estreito que o filtro de interferência nos detectores. Outra verificação, teórica, que fizemos foi a de que esta função é, aproximadamente, independente do espectro angular transversal do feixe de bombeamento. Assim, a dependência transversal da função correlação dos fótons é dada pela amplitude do campo gerador, presente no Hamiltoniano de interação inicial. Este último foi verificado experimentalmente.

Na terceira parte, estudamos as dependências entre as diversas contagens (simples, dupla, tripla e quádrupla) com relação à potência do laser de bombeamento. Registramos um máximo de $4,5 \times 10^{-4}$ contagens quádruplas por segundo por miliwatt para o cristal não-linear simples BBO com 5mm de espessura e $6,25 \times 10^{-2}$ contagens quádruplas por segundo por miliwatt para o cristal não-linear com inversão periódica de domínios PPKTP 10mm de comprimento. Em ambos casos, tínhamos um orifício circular com 3mm de raio no plano de detecção, um filtro de interferência de 40nm e as mesmas condições experimentais. Posteriormente, sem o uso de orifício, obtivemos 52 contagens quádruplas por segundo para 100mW usando o cristal PPKTP. Como aplicação dos estados com quatro fótons gerados por cristais simples, apresentamos o Interferômetro de Hong-Ou-Mandel com um e dois pares

de fótons e, para o caso em que se usam cristais não-lineares com inversão periódica de domínio, registramos a transferência do espectro angular e a formação da imagem quântica. Em ambas as aplicações, os resultados experimentais se ajustam bem com as previsões teóricas.

Dada a transferência do espectro angular para estados com quatro fótons, temos como perspectiva, a geração de uma fonte de estados qudits com quatro fótons, aprimorando o estudo realizado por S. Pádua, C. H, Monken e colaboradores em [122–124]. Outra grande e importante perspectiva é a possibilidade de ampliar os diversos trabalhos realizados por Monken, Pádua e colaboradores [146, 147] para estados usando quatro fótons.

Apêndice A

Álgebra de Operadores Criação e Aniquilação

A.1 Comutadores

Avaliaremos, neste Apêndice, algumas relações de comutação presentes no projeto de tese.

Para simplificar a notação escreveremos os operadores $\hat{a}^\dagger(\vec{q}_a)$ e $\hat{a}(\vec{q}_b)$, como a_a^\dagger e a_b , respectivamente, e, $\delta(\vec{q}_b - \vec{q}_a)$ como $\delta(b - a)$.

A.1.1 Um par de operadores

Assim, temos, inicialmente:

$$a_a a_b^\dagger = \delta(b - a) + a_b^\dagger a_a. \quad (\text{A.1})$$

A.1.2 Dois pares de operadores

Avaliemos agora $a_a a_b a_c^\dagger a_d^\dagger$

$$\begin{aligned} a_a a_b a_c^\dagger a_d^\dagger &= a_a \{ \delta(c - b) + a_c^\dagger a_b \} a_d^\dagger \\ &= \delta(c - b) \times a_a a_d^\dagger + a_a a_c^\dagger \times a_b a_d^\dagger \\ &= \delta(c - b) \times \{ \delta(d - a) + a_d^\dagger a_a \} + \\ &\quad + \{ \delta(c - a) + a_c^\dagger a_a \} \times \{ \delta(d - b) + a_d^\dagger a_b \} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
a_a a_b a_c^\dagger a_d^\dagger &= \delta(c-b)\delta(d-a) + \delta(c-b) \times a_d^\dagger a_a + \\
&\quad + \delta(c-a)\delta(d-b) + \delta(c-a) \times a_d^\dagger a_b + \delta(d-b) \times a_c^\dagger a_a + \\
&\quad + a_c^\dagger \times a_a a_b^\dagger \times a_b \\
&= \delta(c-b)\delta(d-a) + \delta(c-b) \times a_d^\dagger a_a + \\
&\quad + \delta(c-a)\delta(d-b) + \delta(c-a) \times a_d^\dagger a_b + \delta(d-b) \times a_c^\dagger a_a + \\
&\quad + a_c^\dagger \times \{\delta(b-a) + a_b^\dagger a_a\} \times a_b.
\end{aligned}$$

Finalmente,

$$\begin{aligned}
a_a a_b a_c^\dagger a_d^\dagger &= \delta(c-a)\delta(d-b) + \delta(d-a)\delta(c-b) + \\
&\quad \delta(c-b) \times a_d^\dagger a_a + \delta(c-a) \times a_d^\dagger a_b + \\
&\quad + \delta(d-b) \times a_c^\dagger a_a + \delta(b-a) a_c^\dagger a_b + a_c^\dagger a_b^\dagger a_a a_b. \quad (\text{A.2})
\end{aligned}$$

A.1.3 Três pares de operadores

Para avaliar o caso com três pares de operadores, utilizaremos o resultado Eq. (A.2) e Eq. (A.1). Sempre que utilizarmos uma dessas relações grifaremos a expressão a ser substituída.

$$\begin{aligned}
a_a a_b a_c a_d^\dagger a_e^\dagger a_f^\dagger &= a_a \times \underline{a_b a_c a_d^\dagger a_e^\dagger} \times a_f^\dagger \\
&= a_a \{ \delta(e-c)\delta(d-b) + \delta(d-c)\delta(e-b) + \\
&\quad \delta(e-c) \times a_d^\dagger a_b + \delta(d-b) \times a_e^\dagger a_c + \\
&\quad + \delta(e-b) \times a_d^\dagger a_c + \delta(d-c) a_e^\dagger a_b + a_d^\dagger a_e^\dagger a_c a_b \} a_f^\dagger \\
&= \delta(e-c)\delta(d-b) \times \underline{a_a a_f^\dagger} + \delta(d-c)\delta(e-b) \times \underline{a_a a_f^\dagger} + \\
&\quad + \delta(e-c) \times \underline{a_a a_d^\dagger} \times \underline{a_b a_f^\dagger} + \delta(d-b) \times \underline{a_a a_e^\dagger} \times \underline{a_c a_f^\dagger} + \\
&\quad + \delta(e-b) \times \underline{a_a a_d^\dagger} \times \underline{a_c a_f^\dagger} + \delta(d-c) \times \underline{a_a a_e^\dagger} \times \underline{a_b a_f^\dagger} + \\
&\quad + \underline{a_a a_d^\dagger} \times a_e^\dagger a_c \times \underline{a_b a_f^\dagger}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
a_a a_b a_c a_d^\dagger a_e^\dagger a_f^\dagger &= \delta(e-c)\delta(d-b)\{\delta(f-a) + a_f^\dagger a_a\} + \\
&+ \delta(d-c)\delta(e-b)\{\delta(f-a) + a_f^\dagger a_a\} + \\
&+ \delta(e-c)\{\delta(d-a) + a_d^\dagger a_a\} \times \{\delta(f-b) + a_f^\dagger a_b\} + \\
&+ \delta(d-b)\{\delta(e-a) + a_e^\dagger a_a\} \times \{\delta(f-c) + a_f^\dagger a_c\} + \\
&+ \delta(e-b)\{\delta(d-a) + a_d^\dagger a_a\} \times \{\delta(f-c) + a_f^\dagger a_c\} + \\
&+ \delta(d-c)\{\delta(e-a) + a_e^\dagger a_a\} \times \{\delta(f-b) + a_f^\dagger a_b\} + \\
&+ \{\delta(d-a) + a_d^\dagger a_a\} \times a_e^\dagger a_c \times \{\delta(f-b) + a_f^\dagger a_b\} \\
\\
&= \delta(e-c)\delta(d-b)\delta(f-a) + \delta(e-c)\delta(d-b) \times a_f^\dagger a_a + \\
&+ \delta(d-c)\delta(e-b)\delta(f-a) + \delta(d-c)\delta(e-b) \times a_f^\dagger a_a + \\
&+ \delta(e-c)\delta(d-a)\delta(f-b) + \delta(e-c)\delta(d-a) \times a_f^\dagger a_b + \\
&+ \delta(e-c)\delta(f-b) \times a_d^\dagger a_a + \delta(e-c) \times a_d^\dagger \times \underline{a_a a_f^\dagger} \times a_b + \\
&+ \delta(d-b)\delta(e-a)\delta(f-c) + \delta(d-b)\delta(e-a) \times a_f^\dagger a_c + \\
&+ \delta(d-b)\delta(f-c) \times a_e^\dagger a_a + \delta(d-b) \times a_e^\dagger \times \underline{a_a a_f^\dagger} \times a_c + \\
&+ \delta(e-b)\delta(d-a)\delta(f-c) + \delta(e-b)\delta(d-a) \times a_f^\dagger a_c + \\
&+ \delta(e-b)\delta(f-c) \times a_d^\dagger a_a + \delta(e-b) \times a_d^\dagger \times \underline{a_a a_f^\dagger} a_c + \\
&+ \delta(d-c)\delta(e-a)\delta(f-b) + \delta(d-c)\delta(e-a) \times a_f^\dagger a_b + \\
&+ \delta(d-c)\delta(f-b) \times a_e^\dagger a_a + \delta(d-c) \times a_e^\dagger \times \underline{a_a a_f^\dagger} \times a_b + \\
&+ \delta(d-a)\delta(f-b) \times a_e^\dagger a_c + \delta(d-a) \times a_e^\dagger \times \underline{a_c a_f^\dagger} \times a_b \\
&+ \delta(f-b) \times a_d^\dagger \times \underline{a_a a_e^\dagger} a_c + a_d^\dagger \times \underline{a_a a_e^\dagger} \times \underline{a_c a_f^\dagger} a_b,
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
a_a a_b a_c a_d^\dagger a_e^\dagger a_f^\dagger &= \delta(e-c)\delta(d-b)\delta(f-a) + \delta(e-c)\delta(d-b) \times a_f^\dagger a_a + \\
&+ \delta(d-c)\delta(e-b)\delta(f-a) + \delta(d-c)\delta(e-b) \times a_f^\dagger a_a + \\
&+ \delta(e-c)\delta(d-a)\delta(f-b) + \delta(e-c)\delta(d-a) \times a_f^\dagger a_b + \\
&+ \delta(e-c)\delta(f-b) \times a_d^\dagger a_a + \\
&+ \delta(e-c) \times a_d^\dagger \times \{\delta(f-a) + a_f^\dagger a_a\} \times a_b + \\
&+ \delta(d-b)\delta(e-a)\delta(f-c) + \delta(d-b)\delta(e-a) \times a_f^\dagger a_c + \\
&+ \delta(d-b)\delta(f-c) \times a_e^\dagger a_a + \\
&+ \delta(d-b) \times a_e^\dagger \times \{\delta(f-a) + a_f^\dagger a_a\} \times a_c + \\
&+ \delta(e-b)\delta(d-a)\delta(f-c) + \delta(e-b)\delta(d-a) \times a_f^\dagger a_c + \\
&+ \delta(e-b)\delta(f-c) \times a_d^\dagger a_a + \\
&+ \delta(e-b) \times a_d^\dagger \times \{\delta(f-a) + a_f^\dagger a_a\} a_c + \\
&+ \delta(d-c)\delta(e-a)\delta(f-b) + \delta(d-c)\delta(e-a) \times a_f^\dagger a_b + \\
&+ \delta(d-c)\delta(f-b) \times a_e^\dagger a_a + \\
&+ \delta(d-c) \times a_e^\dagger \times \{\delta(f-a) + a_f^\dagger a_a\} \times a_b + \\
&+ \delta(d-a)\delta(f-b) \times a_e^\dagger a_c + \\
&+ \delta(d-a) \times a_e^\dagger \times \{\delta(f-c) + a_f^\dagger a_c\} \times a_b \\
&+ \delta(f-b) \times a_d^\dagger \times \{\delta(e-a) + a_e^\dagger a_a\} a_c + \\
&+ a_d^\dagger \times \{\delta(e-a) + a_e^\dagger a_a\} \times \{\delta(f-c) + a_f^\dagger a_c\} a_b, \\
\\
&= \delta(e-c)\delta(d-b)\delta(f-a) + \delta(e-c)\delta(d-b) \times a_f^\dagger a_a + \\
&+ \delta(d-c)\delta(e-b)\delta(f-a) + \delta(d-c)\delta(e-b) \times a_f^\dagger a_a + \\
&+ \delta(e-c)\delta(d-a)\delta(f-b) + \delta(e-c)\delta(d-a) \times a_f^\dagger a_b + \\
&+ \delta(e-c)\delta(f-b) \times a_d^\dagger a_a + \delta(e-c)\delta(f-a) \times a_d^\dagger a_b + \\
&+ \delta(e-c) \times a_d^\dagger a_f^\dagger a_a a_b + \delta(d-b)\delta(e-a)\delta(f-c) + \\
&+ \delta(d-b)\delta(e-a) \times a_f^\dagger a_c + \delta(d-b)\delta(f-c) \times a_e^\dagger a_a + \\
&+ \delta(d-b)\delta(f-a) \times a_e^\dagger a_c + \delta(d-b) \times a_e^\dagger a_f^\dagger a_a a_c + \\
&+ \delta(e-b)\delta(d-a)\delta(f-c) + \delta(e-b)\delta(d-a) \times a_f^\dagger a_c + \\
&+ \delta(e-b)\delta(f-c) \times a_d^\dagger a_a + \delta(e-b) \times a_d^\dagger a_f^\dagger a_a a_c + \\
&+ \delta(d-c)\delta(e-a)\delta(f-b) + \delta(d-c)\delta(e-a) \times a_f^\dagger a_b + \\
&+ \delta(d-c)\delta(f-b) \times a_e^\dagger a_a + \delta(d-c)\delta(f-a) \times a_e^\dagger a_b + \\
&+ \delta(d-c) \times a_e^\dagger a_f^\dagger a_a a_b + \delta(d-a)\delta(f-b) \times a_e^\dagger a_c + \\
&+ \delta(d-a)\delta(f-c) \times a_e^\dagger a_b + \delta(d-a) \times a_e^\dagger a_f^\dagger a_c a_b \\
&+ \delta(f-b)\delta(e-a) \times a_d^\dagger a_c + \delta(f-b) \times a_d^\dagger a_e^\dagger a_a a_c + \\
&+ \delta(e-a)\delta(f-c) \times a_d^\dagger a_b + \delta(e-a) \times a_d^\dagger a_f^\dagger a_c a_b + \\
&+ \delta(f-c) \times a_d^\dagger a_e^\dagger a_a a_b + a_d^\dagger a_e^\dagger a_f^\dagger a_a a_b a_c
\end{aligned}$$

e, finalmente,

$$\begin{aligned}
a_a a_b a_c a_d^\dagger a_e^\dagger a_f^\dagger = & \delta(e-c)\delta(d-b)\delta(f-a) + \delta(d-c)\delta(e-b)\delta(f-a) + \\
& + \delta(d-c)\delta(e-a)\delta(f-b) + \delta(e-b)\delta(d-a)\delta(f-c) + \\
& + \delta(e-c)\delta(d-a)\delta(f-b) + \delta(d-b)\delta(e-a)\delta(f-c) + \\
& + \delta(e-c)\delta(d-b) \times a_f^\dagger a_a + \delta(d-c)\delta(e-b) \times a_f^\dagger a_a + \\
& + \delta(e-c)\delta(d-a) \times a_f^\dagger a_b + \delta(d-c)\delta(f-a) \times a_e^\dagger a_b + \\
& + \delta(e-c)\delta(f-b) \times a_d^\dagger a_a + \delta(e-c)\delta(f-a) \times a_d^\dagger a_b + \\
& + \delta(d-b)\delta(e-a) \times a_f^\dagger a_c + \delta(d-b)\delta(f-c) \times a_e^\dagger a_a + \\
& + \delta(d-b)\delta(f-a) \times a_e^\dagger a_c + \delta(d-a)\delta(f-b) \times a_e^\dagger a_c + \\
& + \delta(e-b)\delta(d-a) \times a_f^\dagger a_c + \delta(d-a)\delta(f-c) \times a_e^\dagger a_b + \\
& + \delta(e-b)\delta(f-c) \times a_d^\dagger a_a + \delta(f-b)\delta(e-a) \times a_d^\dagger a_c + \\
& + \delta(d-c)\delta(e-a) \times a_f^\dagger a_b + \delta(e-a)\delta(f-c) \times a_d^\dagger a_b + \\
& + \delta(d-c)\delta(f-b) \times a_e^\dagger a_a + \\
& + \delta(d-a) \times a_e^\dagger a_f^\dagger a_c a_b + \delta(f-b) \times a_d^\dagger a_e^\dagger a_a a_c + \\
& + \delta(e-a) \times a_d^\dagger a_f^\dagger a_c a_b + \delta(d-b) \times a_e^\dagger a_f^\dagger a_a a_c + \\
& + \delta(e-b) \times a_d^\dagger a_f^\dagger a_a a_c + \delta(f-c) \times a_d^\dagger a_e^\dagger a_a a_b + \\
& + \delta(e-c) \times a_d^\dagger a_f^\dagger a_a a_b + \delta(d-c) \times a_e^\dagger a_f^\dagger a_a a_b + \\
& + a_d^\dagger a_e^\dagger a_f^\dagger a_a a_b a_c.
\end{aligned} \tag{A.3}$$

A.1.4 Quatro pares de operadores

Observando a Eq. (A.3) na sua forma separada por grupos, há termos com três funções Delta de Dirac, termos com duas funções Delta de Dirac multiplicadas por um par de operadores do tipo $a^\dagger a$, termos com uma função Delta de Dirac multiplicada por operadores com a forma $a^\dagger a^\dagger a a$, além do termo sem funções Delta de Dirac. Explorando esta simetria, podemos deduzir os termos para o caso com quatro pares de operadores. Temos 24

termos com Delta de Dirac, ou seja:

$$\begin{aligned}
& a_a a_b a_c a_d a_e^\dagger a_f^\dagger a_g^\dagger a_h^\dagger = \\
& = \delta(e-a)\delta(f-b)\delta(g-c)\delta(h-d) + \delta(e-b)\delta(f-c)\delta(g-d)\delta(h-a) + \\
& + \delta(e-c)\delta(f-d)\delta(g-a)\delta(h-b) + \delta(e-d)\delta(f-a)\delta(g-b)\delta(h-c) + \\
& + \delta(e-a)\delta(f-c)\delta(g-d)\delta(h-b) + \delta(e-a)\delta(f-d)\delta(g-b)\delta(h-c) + \\
& + \delta(e-c)\delta(f-b)\delta(g-d)\delta(h-a) + \delta(e-d)\delta(f-b)\delta(g-a)\delta(h-c) + \\
& + \delta(e-b)\delta(f-d)\delta(g-c)\delta(h-a) + \delta(e-d)\delta(f-a)\delta(g-c)\delta(h-b) + \\
& + \delta(e-b)\delta(f-c)\delta(g-a)\delta(h-d) + \delta(e-c)\delta(f-a)\delta(g-b)\delta(h-d) + \\
& + \delta(e-a)\delta(f-b)\delta(g-d)\delta(h-c) + \delta(e-a)\delta(f-d)\delta(g-c)\delta(h-b) + \\
& + \delta(e-a)\delta(f-c)\delta(g-b)\delta(h-d) + \delta(e-d)\delta(f-b)\delta(g-c)\delta(h-a) + \\
& + \delta(e-c)\delta(f-b)\delta(g-a)\delta(h-d) + \delta(e-b)\delta(f-a)\delta(g-c)\delta(h-d) + \\
& + \delta(e-d)\delta(f-c)\delta(g-b)\delta(h-a) + \delta(e-c)\delta(f-b)\delta(g-a)\delta(h-d) + \\
& + \delta(e-b)\delta(f-a)\delta(g-d)\delta(h-c) + \delta(e-a)\delta(f-d)\delta(g-c)\delta(h-b) + \\
& + \delta(e-b)\delta(f-d)\delta(g-a)\delta(h-c) + \delta(e-a)\delta(f-c)\delta(g-d)\delta(h-b) + \\
& + \delta(e-a)\delta(f-b)\delta(g-c) \times a_h^\dagger a_d + \text{outros termos que aniquilam} \\
& \text{o estado de vácuo} \\
& + \delta(e-a)\delta(f-b) \times a_g^\dagger a_h^\dagger a_c a_d + \text{outros termos que aniquilam} \\
& \text{o estado de vácuo} \\
& + \delta(e-a) \times a_g^\dagger a_h^\dagger a_f^\dagger a_b a_c a_d + \text{outros termos que aniquilam} \\
& \text{o estado de vácuo} \\
& + a_e^\dagger a_f^\dagger a_g^\dagger a_h^\dagger a_a a_b a_c a_d. \tag{A.4}
\end{aligned}$$

É importante observar que todos os termos que não são Deltas de Dirac puro têm, pelo menos, um operador aniquilação no extremo direito que aniquilam o vácuo.

Apêndice B

Artigos

B.1 *Hong-Ou-Mandel interferometer with one and two photons pairs*

Author: Olavo Cosme, S. Pádua, Fabio A. Bovino, A. Mazzei, Fabio Sciarrino, and Francesco De Martini.

B.1.1 Resumo

No processo óptico não-linear da CPD espontânea, um feixe de laser (bombeamento), ao incidir em um cristal não-linear, gera pares de fótons. Neste processo, energia e momento são conservados. É vasto o uso do interferômetro de Hong-Ou-Mandel para estudos com dois fótons emaranhados. Neste trabalho, calculamos o padrão de interferência do interferômetro de Hong-Ou-Mandel para o caso com um e dois pares de fótons e estudamos a dependência da visibilidade do padrão de interferência de quarta ordem com a potência do laser que gera os pares de fótons no interferômetro. Neste cálculo consideramos a CPD espontânea e simultânea de dois fótons do laser de bombeamento gerando dois pares de fótons, que são direcionados para o divisor de feixes do interferômetro. Nossas previsões teóricas estão em bom acordo com os resultados experimentais que obtivemos [144].

B.2 *Controlling the transverse correlation in QPM parametric down-conversion*

Author: Olavo Cosme, G. Lima, A. Delgado, C. H. Monken, and S. Pádua

B.2.1 Resumo

Monken e colaboradores, em [Monken *et al.*, Phys. Rev. A **57**, 3123 (1998)] (vide Anexo 1 desta tese), mostraram que os fótons gerados por cristais finos no processo de conversão paramétrica descendente carregam informação do espectro angular do feixe de bombeamento. Neste trabalho verificamos, teórica e experimentalmente, a transferência do espectro angular para fótons gerados no processo de conversão paramétrica descende com cristais com inversão periódica de domínios. Estes cristais têm apresentado aplicações recentes interessantes, tais como a construção de fonte laser via geração de segundo harmônico óptico. Estes apresentam uma geração eficiente de fótons via conversão paramétrica descendente. A verificação da transferência do espectro angular é importante para a criação de fontes intensas de fótons emaranhados espacialmente. Submetido ao *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*.

B.3 *Four photons generation using PPKTP*

Author: Olavo Cosme, P. L. Assis, A. N. Oliveira, and S. Pádua

B.3.1 Resumo

Trabalhos recentes têm mostrado que cristais com inversão periódica de domínios apresentam uma grande eficiência de geração de segundo harmônico óptico e para geração de fótons via conversão paramétrica descendente não é diferente. Verificamos, teórica e experimentalmente, a geração de estados com quatro fótons via conversão paramétrica descendente de dois fótons do feixe de bombeamento usando cristais com inversão periódica de domínio. Verificamos a dependência da detecção simples, detecção dupla, detecção tripla e da detecção quádrupla de fótons com a potência do feixe de bombeamento. Comparamos a eficiência de geração de quatro fótons entre cristais PPKTP e BBO. Mostramos um aumento de 3 vezes na eficiência de geração para cristais PPKTP quando comparados com cristais BBO do mesmo com-

primento.

B.4 *Transfer of angular spectrum and quantum image formation in four photons states*

Author: Olavo Cosme, P. L. Assis, and S. Pádua

B.4.1 **Resumo**

Neste trabalho verificamos, teórica e experimentalmente, a transferência do espectro angular para estados com quatro fótons gerados no processo de conversão paramétrica descendente usando cristais com inversão periódica de domínio. Os quatro fótons gerados aqui são originados de dois fótons do feixe de bombeamento. Trabalhos recentes têm mostrado que cristais com inversão periódica de domínio, apresentam grande eficiência na geração de segundo harmônico óptico. Verificar a transferência do espectro angular para estados multifotônicos é importante para futuras aplicações como a criação de estados emaranhados espacialmente.

B.5 *Geometrically induced singular behaviour of entanglement*

Author: D. Cavalcanti, P. L. Saldanha, O. Cosme, F. G. S. L. Brandão, C. H. Monken, S. Pádua, M. França Santos e M. O. Terra Cunha.

B.5.1 **Resumo**

Transição de fase é um fenômeno geral que pode ocorrer em diferentes sistemas físicos. A principal característica da ocorrência da transição de fase é uma descontinuidade em algumas das grandezas envolvidas. Na transição líquido-gás, por exemplo, temos uma descontinuidade na densidade do sistema, para uma certa temperatura crítica. Em sistemas quânticos não é diferente. A transição de fase quântica está associada à descontinuidade em,

por exemplo, concorrência, que é uma das medidas do emaranhamento de um sistema. Neste trabalho, mostramos uma descontinuidade na Robustez de uma mistura de dois estados de Bell. Este trabalho faz parte da tese de Pablo Saldanha e não foi discutido neste trabalho. Uma cópia deste artigo encontra-se no Anexo 2 desta tese.

B.6 *Coherent control with photon states*

Author: I. Rodrigues, O. Cosme, C. H. Monken, and S. Pádua

B.6.1 **Resumo**

Estudamos a absorção de dois fótons por molécula quando os fótons são preparados em um estado espacial emaranhado em alta dimensão. Uma expressão para a seção de choque da absorção de dois fótons é obtida. A luz é preparada em um estado qudit espacial e sua interação com o sistema dois níveis de uma molécula mostra novos efeitos na seção de choque de absorção. Oscilações na seção de choque de absorção mostra a sua dependência com caminhos de fase nos estados qudits. A seção de choque de absorção de dois fótons é dependente da dimensão do estado qudit de fótons. Uma cópia deste artigo encontra-se no Anexo 3 desta tese.

Referências Bibliográficas

- [1] Operator's Manual - The Coherent - Mira Model 900-F Laser.
- [2] R. Le Targat, J.-J. Zondy e P. Lemonde, *Opt. Commun.* **247** 471 (2005).
- [3] Sujing Zhang, Yongmin Li, Jianli Liu e Kuanshou Zhang, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** 4163 (2006)
- [4] Yongmin Li, Shurong Yang, Sujing Zhang, Kuanshou Zhang, *Opt. Commun.* **256** 576 (2006).
- [5] B.A. Cumberland, J.C. Travers, R.E. Kennedy, S.V. Popov e J.R. Taylor, *Opt. Commun.* **277** 134 (2007).
- [6] F. J. Kontur, I. Dajani, Yalin Lu e R. J. Knize, *Opt. Exp.* **15**, 12882 (2007).
- [7] G. R. Fayaz, M. Ghotbi e M. Ebrahim-Zadeha, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 061110 (2005).
- [8] Bao-Sen Shi e Akihisa Tomita, *New Jour. Phys.* **8**, 38 (2006).
- [9] Ye Pu, Jie Wu, Mankei Tsang e Demetri Psaltis, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 131120 (2007)
- [10] Taehyun Kim, Marco Fiorentino e Franco N. C. Wong, *Phys. Rev. A* **73** 012316 (2006)
- [11] Christopher E. Kuklewicz, Marco Fiorentino, Gaétan Messin, Franco N. C. Wong, and Jeffrey H. Shapiro *Phys. Rev. A* **69** 013807 (2004)
- [12] Marco Fiorentino, Sean M. Spillane, Raymond G. Beausoleil, Tony D. Roberts, Philip Battle e Mark W. Munro *Opt. Exp.* **15**, 7479 (2007).
- [13] Sean M. Spillane, Marco Fiorentino e Raymond G. Beausoleil *Opt. Exp.* **15**, 8770 (2007).

- [14] Clara I. Osorio, Gabriel Molina-Terriza e Juan P. Torres¹, *Phys. Rev. A* **77** 015810 (2008).
- [15] M. Avenhaus, H. B. Coldenstrodt-Ronge, K. Laiho, W. Mauerner, I. A. Walmsley e C. Silberhorn, arXiv:0804.0740v2 07 agosto 2008.
- [16] Robert W. Boyd, *Nonlinear Optics* Academic Press (2003).
- [17] Shunhua Wang, tese de doutorado - *Royal Institute of Technology* (2005).
- [18] J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P.S. Pershan, *Phys. Rev.* **127** 1918 (1962).
- [19] D. S. Hum e M. M. Fejer, *C. R. Physique* **8** 180 (2007).
- [20] M. M. Fejer, G. A. Magel, Dieter H. Jundt and Robert L. Byer *IEEE J. Quantum Eletron.* **28** 2631 (1992).
- [21] Ekert, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 661 (1991).
- [22] Bennett, C. H. e Wiesner, S. J. *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2881 (1992).
- [23] Bennett, C. H. et al. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3081 (1993).
- [24] Pieter Kok, W. J. Munro, Kae Nemoto, T. C. Ralph, Jonathan P. Dowling e G. J. Milburn, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 135 (2007).
- [25] S. Bennett, C. e DiVicenzo, D. *Nature* **404**, 247 (2000).
- [26] Gottesman, D. e Chuang, I. L. *Nature* **402**, 390 (1999).
- [27] Knill, E., Laflamme, R. e Milburn, G. J. *Nature* **409**, 46 (2001).
- [28] Linden, N. e Popescu, S. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 047901 (2001).
- [29] Nielsen, M. A. *Phys. Lett. A* **308**, 96 (2003).
- [30] Briegel, H. J. e Raussendorf, R. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 910 (2001).
- [31] S. Massar and S. Popescu, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1259 (1995).
- [32] K. Banaszek, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1366 (2001).
- [33] W. K. Wootters e W. H. Zurek, *Nature* **299**, 802 (1982).
- [34] V. Buzek e M. Hillery, *Phys. Rev. A* **54**, 1844 (1996)

- [35] N. J. Cerf, M. Bourennane, A. Karlsson e N. Gisin, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 127902 (2002).
- [36] C. Bennett et al., *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1895 (1993).
- [37] N. Gisin e S. Massar, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2153 (1997).
- [38] S. P. Walborn, D. S. Ether, R. L. de Matos Filho e N. Zagury, *Phys. Rev. A* **76**, 033801 (2007).
- [39] V. Buzek e M. Hillery, *Phys. Rev. A* **54**, 1844 (1996).
- [40] W.K. Wootters e W.H. Zurek, *Nature* (London) **299**, 802 (1982)
- [41] Ayman F. Abouraddy, Timothy Yarnall, Bahaa E. A. Saleh e Malvin C. Teich, *Phys. Rev. A* **75**, 052114 (2007).
- [42] A. Aspect, P. Grangier e G. Roger, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 460 (1981).
- [43] A. Aspect, P. Grangier e G. Roger, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 91 (1982).
- [44] A. Aspect, J. Dalibard, e G. Roger, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1804 (1982).
- [45] J. G. Rarity e P. R. Tapster, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2495 (1990).
- [46] P. R. Tapster, J. G. Rarity e P. C. M. Owens, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1923 (1994).
- [47] W. Tittel, J. Brendel, H. Zbinden e N. Gisin, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3563 (1998).
- [48] G. Weihs, T. Jennewein, C. Simon, H. Weinfurter e A. Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5039 (1998).
- [49] T. E. Kiess, Y. H. Shih, A. V. Sergienko e C. O. Alley, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3893 (1993).
- [50] P. G. Kwiat, K. Mattle, H. Weinfurter, A. Zeilinger, A. V. Sergienko e Y. Shih, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4337 (1995).
- [51] P. G. Kwiat, E. Waks, A. G. White, I. Appelbaum e P. H. Eberhard, *Phys. Rev. A* **60**, R773 (1999).
- [52] J. D. Franson, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2205 (1989).
- [53] Y. H. Shih, A. V. Sergienko e M. H. Rubin, *Phys. Rev. A* **47**, 1288 (1993).

- [54] P. G. Kwiat, A. M. Steinberg e R. Y. Chiao, *Phys. Rev. A* **47**, R2472 (1993).
- [55] H. H. Arnaut e G. A. Barbosa, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 286 (2001).
- [56] S. Franke-Arnold, S. M. Barnett, M. J. Padgett e L. Allen, *Phys. Rev. A* **65**, 033823 (2002).
- [57] G. A. Barbosa e H. H. Arnaut, *Phys. Rev. A* **65**, 053801 (2002).
- [58] J. P. Torres, Y. Deyanova, L. Torner e G. Molina-Terriza, *Phys. Rev. A* **67**, 052313 (2003).
- [59] S. P. Walborn, A. N. de Oliveira, R. S. Thebaldi e C. H. Monken, *Phys. Rev. A* **69**, 023811 (2004).
- [60] X.-F. Ren, G.-P. Guo, B. Yu, J. Li e G.-C. Guo, *J. Opt. B: Quantum Semiclassical Opt.* **6**, 243 (2004).
- [61] C. K. Law e J. H. Eberly, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 127903 (2004).
- [62] S. Walborn et al., *Phys. Rev. Lett.* **96**, 090501 (2006).
- [63] M. O'Sullivan-Hale et al., *Phys. Rev. Lett.* **94**, 220501 (2005).
- [64] L. Neves et al., *Phys. Rev. Lett.* **94**, 100501 (2005).
- [65] A. Vaziri, G. Weihs e A. Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 240401 (2002).
- [66] N. Langford et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 053601 (2004).
- [67] R. T. Thew et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 010503 (2004).
- [68] H. de Riedmatten et al., *Phys. Rev. A* **69**, 050304 (2004).
- [69] D. Stucki, H. Zbinden e N. Gisin, quant-ph/0502169.
- [70] J. C. Howell, A. Lamas-Linares e D. Bouwmeester, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 030401 (2002).
- [71] Yu. Bogdanov et al., *Phys. Rev. Lett.* **93**, 230503 (2004).
- [72] L. Neves, S. Pádua e C. Saavedra, *Phys. Rev. A* **69**, 042305 (2004).
- [73] L. Neves, G. Lima, J. G. Aguirre Gómez, C. H. Monken, C. Saavedra, and S. Pádua, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 100501 (2005).

- [74] G. Lima, Leonardo Neves, Ivan F. Santos, J. G. Aguirre Gómez, C. Saavedra e S. Pádua, *Phys. Rev. A* **73**, 032340 (2005).
- [75] P. H. Souto Ribeiro, D. P. Caetano, M. P. Almeida, J. A. Huguenin, B. Coutinho dos Santos, and A. Z. Khoury, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 133602 (2001).
- [76] Souto Ribeiro, P. H. ; Caetano, D. P. ; Monken, C. H. ; J.T.C. Pardal ; Khoury, A. Z.; *Jour. of Mod. Opt.* **51** 983 (2004).
- [77] D.P. Caetano and P.H. Souto Ribeiro, *Phys. Rev. A* **68** 043806 (2003).
- [78] Jaeyoon Cho e Hai-Woong Lee, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 160501 (2005).
- [79] Nicolas C. Menicucci, Peter van Loock, Mile Gu, Christian Weedbrook, Timothy C. Ralph and Michael A. Nielsen, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 110501 (2005).
- [80] Philip Walther, Markus Aspelmeyer, Kevin J. Resch e Anton Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 020403 (2005).
- [81] XuBo Zou e W. Mathis, *Phys. Rev. A* **72** 013809 (2005).
- [82] Nikolai Kiesel, Christian Schmid, Ulrich Weber, Géza Tóth, Otfried Gühne, Rupert Ursin e Harald Weinfurter, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 210502 (2005).
- [83] Robert Raussendorf, Daniel E. Browne e Hans J. Briegel, *Phys. Rev. A* **68** 022312 (2003).
- [84] Valerio Scarani, Antonio Acín, Emmanuel Schenck e Markus Aspelmeyer, *Phys. Rev. A* **71** 042325 (2005).
- [85] Massoud Borhani e Daniel Loss, *Phys. Rev. A* **71** 034308 (2005).
- [86] XuBo Zou e W. Mathis, *Phys. Rev. A* **71** 032308 (2005).
- [87] Michael A. Nielsen, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 040503 (2004).
- [88] Hans J. Briegel e Robert Raussendorf, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 910 (2001).
- [89] Giuseppe Vallone, Enrico Pomarico, Paolo Mataloni, Francesco De Martini e Vincenzo Berardi, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 180502 (2007).
- [90] Tetsufumi Tanamoto, Yu-xi Liu, Shinobu Fujita, Xuedong Hu e Franco Nori, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 230501 (2006).

- [91] Michael A. Nielsen, arXiv:quant-ph/0504097v2 1 Jul 2005
- [92] H. S. Eisenberg, J. F. Hodelin, G. Khoury e D. Bouwmeester, *Phys. Rev. Lett.* **94** 090502 (2005).
- [93] R S Said, M R B Wahiddin e B A Umarov, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** 1269 (2006)
- [94] F. Shafiei, P. Srinivasan e Z. Y. Ou, *Phys. Rev. A* **70** 043803 (2004).
- [95] Jun Zhang, Xiao-Hui Bao, Teng-Yun Chen, Tao Yang, Adán Cabello e Jian-Wei Pan, *Phys. Rev. A* **75** 022302 (2007).
- [96] Gavin K. Brennen, Dianne P. O’Leary e Stephen S. Bullock, *Phys. Rev. A* **71** 052318 (2005).
- [97] H. Bechmann-Pasquinucci e N. Gisin, arXiv:quant-ph/0204122 v1 21 Apr 2002.
- [98] Giacomo Mauro D’Ariano, Paolo Mataloni e Massimiliano F. Sacchi, *Phys. Rev. A* **71** 062337 (2005).
- [99] N. K. Langford, R. B. Dalton, M. D. Harvey, J. L. O’Brien, G. J. Pryde, A. Gilchrist, S. D. Bartlett e A.G.White, *Phys. Rev. Lett.* **93** 053601 (2004).
- [100] Zhi Zhao, Yu-Ao Chen, An-Ning Zhang, Tao Yang, Hans J. Briegel e Jian-Wei Pan, *Nature*, **430** 54 (2004).
- [101] Leonardo Neves, S. Pádua, and Carlos Saavedra, *Phys. Rev. A* **69** 042305 (2004).
- [102] A.V. Burlakov, L.A. Krivitskiy, S.P. Kulik, G.A. Maslennikov e M.V. Chekhova, arXiv:quant-ph/0207096 v2 17 Sep 2002.
- [103] Adán Cabello, arXiv:quant-ph/0306074 v1 11 Jun 2003.
- [104] Fabio Dell’Anno, Silvio De Siena e Fabrizio Illuminati, arXiv:quant-ph/0701050 v1 9 Jan 2007.
- [105] G. Molina-Terriza, A. Vaziri, J. Řeháček, Z. Hradil e A. Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **92** 167903 (2004).
- [106] Dagomir Kaszlikowski, Piotr Gnaciniński, Marek Żukowski, Wiesław Miklaszewski e Anton Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **85** 4418 (2000).

- [107] M. Muraio, D. Jonathan, M. B. Plenio e V. Vedral, *Phys. Rev. A* **59** 1050 (1999).
- [108] Alipasha Vaziri, Gregor Weihs e Anton Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **89** 240401 (2002).
- [109] So-Young Baek e Yoon-Ho Kim, *Phys. Rev. A* **75** 034309 (2007).
- [110] Grant R. Fowles, *Introduction to modern optics*, Library of Congress Cataloging in Publication Data, (1975).
- [111] George B. Arfken e Hans J. Weber, *Mathematical Methods for Physicists* Harcourt / Academic Press (2005).
- [112] Joseph W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics* McGraw-Hill (2005).
- [113] Max Born e Emil Wolf, *Principles of Optics*, Cambridge University Press (2005).
- [114] Peter Milonni e Joseph H. Eberly, *Lasers*, Wiley-Interscience (2000).
- [115] L. J. Wang, Tese de doutorado University of Rochester (1992).
- [116] L. Mandel, E. Wolf *Optical coherence and quantum optics*, Cambridge University Press, (1995).
- [117] C. H. Monken, Notas de aula - Aplicação da Óptica de Fourier à conversão paramétrica descendente (2004).
- [118] C. H. Monken, P. H. Souto Ribeiro and S. Pádua, *Phys. Rev. A* **57** 3123 (1998)
- [119] Rafael Santos Thebaldi, Dissertação de mestrado Universidade Federal de Minas Gerais (2001).
- [120] I. F. Santos, M. A. Sagioro, C. H. Monken and S. Pádua, *Phys. Rev. A* **67**, 033812 (2003).
- [121] E. J. S. Fonseca, Zoltan Paulini, P. Nussenzveig, C. H. Monken e S. Pádua, *Phys. Rev. A* **63**, 043819 (2001).
- [122] P. H. Souto Ribeiro, S. Pádua e C. H. Monken, *Phys. Rev. A* **60**, 5074 (1999).

- [123] Leonardo Neves, G. Lima, J. G. Aguirre Gomez, C. H. Monken, C. Saavedra and S. Pádua, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 100501 (2005).
- [124] G. Lima, Leonardo Neves, I. F. Santos, J. G. Aguirre Gomez, C. Saavedra and S. Pádua, *Phys. Rev. A* **73**, 032340 (2006).
- [125] Leonardo Neves, S. Pádua, and Carlos Saavedra, *Phys. Rev. A* **69** 042305 (2004).
- [126] Z. Y. Ou, *Quantum Semiclass. Opt.* **9**, 599–614 (1997).
- [127] Raicol Crystals Ltd.TM
- [128] Newport company
- [129] Potassium Titanium Oxide Phosphate datasheet, GAMDAN Optics. The optical crystals specialist.
- [130] Crystals datasheet, ALTECHNA Co. Ltd. Laser related components and technologies.
- [131] P. D. Maker, R. W. Terhune, M. Nisenoff, and C. M. Savage, *Phys. Rev. Lett.* **8**, 21 (1962).
- [132] M. Barbieri, C. Cinelli, P. Mataloni, and F. De Martini, *Phys. Rev. A* **72**, 052110 (2005).
- [133] Zeqian Chen, arXiv:quant-ph/0402007 v1 2 Feb 2004.
- [134] Adán Cabello, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 140406 (2006).
- [135] Marco Barbieri, Francesco De Martini, Paolo Mataloni, Giuseppe Vallone e Adán Cabello, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 140407 (2006).
- [136] Xi-Feng Ren, Guo-Ping Guo e Guang-Can Guo, *Physics Letters A* **343** 8 (2005)
- [137] Julio T. Barreiro, Nathan K. Langford, Nicholas A. Peters e Paul G. Kwiat, arXiv:quant-ph/0507128 v1 13 Jul 2005.
- [138] Xi-Feng Ren, Guo-Ping Guo, Jian Li, Chuan-Feng Li e Guang-Can Guo, arXiv:quant-ph/0502003 v1 1 Feb 2005.
- [139] Z. Y. Ou, J. -K. Rhee and L. J. Wang, *Phys. Rev. A* **60** 593 (1999).
- [140] Z. Y. Ou, *Phys. Rev. A* **72** 053814 (2005).

- [141] N. Boeuf, D. Branning, I. Chaperot, E. Daule, S. Guerin, G. Jaeger, A. Muller, A. Migdall, *Opt. Eng.* **39**, 1016 (2000).
- [142] P. G. Kwiat, K. Mattle, H. Weinfurter, A. Zeilinger, A. Sergienko, and Y. Shih, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4337 (1995).
- [143] B. A. Saleh and M. C. Teich, *Fundamentals of Photonics*, John Wiley, New York (1991).
- [144] Olavo Cosme; Fabio A. Bovino; A. Mazzei; Fabio Sciarrino; S. Pádua; F. de Martini, *Phys. Rev. A*, **77** 053822, (2008).
- [145] Olavo Cosme, Dissertação de Mestrado, UFMG 2004.
- [146] Ivan Santos Ferreira, Tese de Doutorado, UFMG 2006.
- [147] Ivan F. Santos, M. A. Sagioro, C. H. Monken, and S. Pádua, *Phys. Rev. A* **67**, 033812 (2003).
- [148] C. K. Hong, Z. Y. Ou, and L. Mandel, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2044 (1987).
- [149] A. G. da Costa Moura, W. A. T. Nogueira, C. H. Monken e S. P. Walborn - arXiv:0806.4624 v1 27 Jun 2008.

Anexo 1

Transfer of angular spectrum and image formation in spontaneous parametric down-conversion

C. H. Monken,* P. H. Souto Ribeiro, and S. Pádua

Departamento de Física, Universidade Federal de Minas Gerais, Caixa Postal 702, Belo Horizonte, MG 30123-970, Brazil

(Received 30 October 1997)

We show that the two-photon state generated in the process of spontaneous parametric down-conversion in a thin crystal carries information about the angular spectrum of the pump beam. This information transfer allows one to control the transverse correlation properties of the down-converted fields by manipulating the pump field, with consequences for a broad class of experiments. The effect is demonstrated theoretically and experimentally, in connection with the formation of fourth-order images by the down-converted beams. [S1050-2947(98)03004-2]

PACS number(s): 42.50.Ar

Transverse properties of the fields generated by spontaneous parametric down-conversion have received attention from a number of groups, from both theoretical and experimental points of view [1–14]. Most of this interest is due to the rich variety of fourth-order interference effects shown by the entangled two-photon state generated by that system, some of them exhibiting nonlocal features [15].

Some effects related to the focusing of the pump beam were studied by Klyshko [1,2], and Pittman and co-workers [7,9]. A detailed account of the transverse correlation of the down-converted beams under the action of passive linear optical systems in their paths was recently given by Rubin [12].

In this work we present a treatment which links the transverse properties of the down-converted beams with those of the pump beam. We show that when the crystal is short enough in the pump beam propagation direction, the angular spectrum of the pump beam is transferred to the two-photon state generated by the down-conversion process. The angular spectrum transfer gives rise to a new effect, which we have demonstrated experimentally—the image transfer from the pump to the two-photon down-converted field. This effect offers the possibility of controlling the structure of the transverse profile of the coincidence detection without disturbing the intensity profile, and without any additional optics in the down-converted beams. As its potential applications, we can cite experimental tests of Einstein’s local realism [16,17], quantum interferometry [18], and quantum cryptography [19], among others.

Let us consider the nonlinear crystal in the form of a box centered at the origin, with sides L_1 , L_2 , and L_3 parallel to the x , y , and z axes, respectively. The pumping is provided by a continuous monochromatic laser beam, whose cross section is entirely contained in the nonlinear medium, propagating along the positive- z axis. For simplicity, we will assume that the crystal is embedded in an index-matching passive medium, so that the wave vectors are nearly the same in both media. The nonlinearity and pump power will be considered weak enough to assure a first-order perturbative approach [20]. If the quantization volume is very large, one can

write the following expression for the state generated by spontaneous parametric down-conversion, based on the treatment given in Ref. [20]:

$$|\psi\rangle = |\text{vac}\rangle + \text{const} \times \int d\mathbf{k}_s \int d\mathbf{k}_i \text{sinc} \frac{1}{2} (\omega_s + \omega_i - \omega_p) t \times \Phi(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) |1; \mathbf{k}_s\rangle |1; \mathbf{k}_i\rangle, \quad (1)$$

where

$$\Phi(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = \int d\mathbf{q}_p v(\mathbf{q}_p) \left[\frac{\omega_s \omega_i \omega_p}{n^2(\mathbf{k}_s) n^2(\mathbf{k}_i) n^2(\mathbf{k}_p)} \right]^{1/2} \times \prod_{j=1}^3 \text{sinc} \frac{1}{2} (\mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_p)_j L_j. \quad (2)$$

\mathbf{q}_p is the transverse (xy) component of the pump wave vector \mathbf{k}_p , $v(\mathbf{q}_p)$ is the angular spectrum of the pump beam, and $n(\mathbf{k}_j)$ are the refractive indices of the nonlinear medium for the modes s (signal), i (idler), and p (pump). It is known that the phase-matching conditions, expressed by the sinc functions in Eqs. (1) and (2) are satisfied in nonlinear crystals only for certain polarizations of the modes s , i , and p , characterizing two types of phase matching: type I ($o \rightarrow ee$) and type II ($o \rightarrow oe$ or $e \rightarrow oe$), where o (e) stands for ordinary (extraordinary) polarization, referring to the modes $p \rightarrow si$. The set of polarizations is implicit in Eqs. (1) and (2). We will consider only the monochromatic case, with $\omega_s + \omega_i = \omega_p$, so the time dependence of state (1) disappears. This approximation is justified by the fact that the only frequencies of interest are the ones defined by filters placed in front of the detectors, which can be very narrow interference filters. The following approximations will also be assumed. The pump beam has a narrow angular spectrum, and the down-converted modes are observed only in points close to the z axis (collinear phase matching), so that $|\mathbf{q}| \ll |\mathbf{k}|$ for the three modes involved. Under these approximations, the refractive indices $n(\mathbf{k}_p)$, $n(\mathbf{k}_s)$, and $n(\mathbf{k}_i)$ can be regarded as constants. Integral (2) then becomes

*Corresponding author. Electronic address: monken@fisica.ufmg.br

$$\Phi(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = v(\mathbf{q}_s + \mathbf{q}_i) \text{sinc} \frac{1}{2} (\sqrt{k_s^2 - q_s^2} + \sqrt{k_i^2 - q_i^2} - \sqrt{k_p^2 - |\mathbf{q}_s + \mathbf{q}_i|^2}) L_z. \quad (3)$$

If L_z is small compared to $|\mathbf{q}_s|^{-1}$ and $|\mathbf{q}_i|^{-1}$, $\Phi(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i)$ can finally be written as

$$\Phi(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) \approx v(\mathbf{q}_s + \mathbf{q}_i). \quad (4)$$

In this thin crystal approximation, only the transverse components of the momentum are conserved, and the angular spectrum of the pump beam is transferred to the two-photon state.

We now show that this transfer of the angular spectrum leads to the observation of images through the fourth-order correlation function of the down-converted fields. The photodetection coincidence rate $C(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}_i)$ for very small detectors located at \mathbf{r}_s and \mathbf{r}_i is proportional to

$$\langle \psi | E^{(-)}(\mathbf{r}_s) E^{(-)}(\mathbf{r}_i) E^{(+)}(\mathbf{r}_i) E^{(+)}(\mathbf{r}_s) | \psi \rangle. \quad (5)$$

If we write the electric-field operator as

$$E^{(+)}(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{q} a(\mathbf{q}) e^{i(\mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\rho} + \sqrt{k^2 - \rho^2} z)}, \quad (6)$$

where $\boldsymbol{\rho}$ is the transverse component of \mathbf{r} , $C(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}_i)$ will be found to be

$$C(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}_i) = \text{const} \times |g(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}_i)|^2, \quad (7)$$

where

$$g(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}_i) = \int d\mathbf{q}_s \int d\mathbf{q}_i v(\mathbf{q}_s + \mathbf{q}_i) \times e^{i(\mathbf{q}_s \cdot \boldsymbol{\rho}_s + \mathbf{q}_i \cdot \boldsymbol{\rho}_i + \sqrt{k_s^2 - q_s^2} z_s + \sqrt{k_i^2 - q_i^2} z_i)}. \quad (8)$$

Restricting the observation region to the limit $|\boldsymbol{\rho}| \ll |\mathbf{r}|$, and working out expression (8), $g(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}_i)$ can be put in the form

$$g(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}_i) = \int d\boldsymbol{\rho} \mathcal{W}(\boldsymbol{\rho}) e^{-i(|\mathbf{k}_p|/2Z_o)|\mathbf{R} - \boldsymbol{\rho}|^2}, \quad (9)$$

apart from an irrelevant phase factor, provided that Z_o and \mathbf{R} are given by

$$\frac{1}{Z_o} = \frac{|\mathbf{k}_s|}{|\mathbf{k}_p|} \frac{1}{z_s} + \frac{|\mathbf{k}_i|}{|\mathbf{k}_p|} \frac{1}{z_i}, \quad (10)$$

$$\mathbf{R} = \frac{Z_o}{z_s} \frac{|\mathbf{k}_s|}{|\mathbf{k}_p|} \boldsymbol{\rho}_s + \frac{Z_o}{z_i} \frac{|\mathbf{k}_i|}{|\mathbf{k}_p|} \boldsymbol{\rho}_i = \frac{1}{\mu_s} \boldsymbol{\rho}_s + \frac{1}{\mu_i} \boldsymbol{\rho}_i. \quad (11)$$

$\mathcal{W}(\boldsymbol{\rho})$ is the Fourier transform of $v(\mathbf{q})$, that is, the amplitude profile of the pump beam at $z=0$. The integral in Eq. (9) describes the propagation of $\mathcal{W}(\boldsymbol{\rho})$ from $z=0$ to $z=Z_o$ in the paraxial approximation (which we have already assumed). Therefore, the coincidence rate profile will be

$$C(\mathbf{r}_s, \mathbf{r}_i) = \text{const} \times |\mathcal{W}(\mathbf{R}; Z_o)|^2, \quad (12)$$

that is, the intensity profile of the pump beam at $z=Z_o$ is transferred to the coincidence rate profile, in terms of the

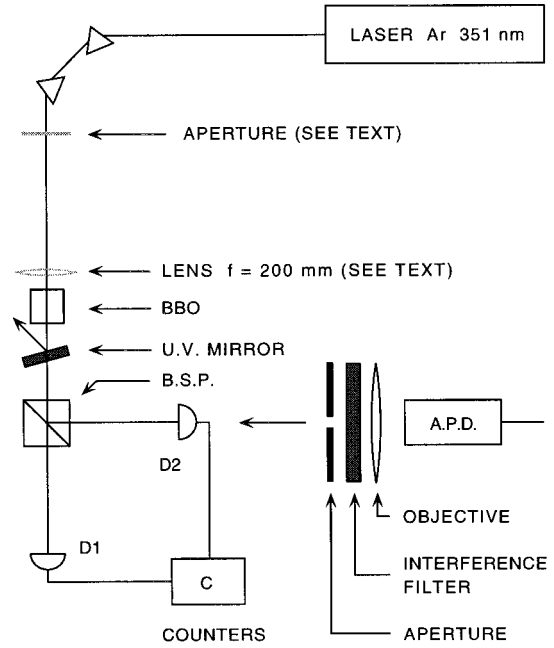


FIG. 1. Experimental setup.

coordinate \mathbf{R} given by Eq. (11). \mathbf{R} is a weighted mean of $\boldsymbol{\rho}_s$ and $\boldsymbol{\rho}_i$, and μ_s and μ_i in Eq. (11) are magnification factors. If an optical system (apertures and lenses) is inserted into the pump beam before it reaches the crystal, leading it to form an image of some obstacle or aperture on the plane $z=Z_o$, this image will also be transferred to the coincidence rate profile. The definition of Z_o given by Eq. (10) can be regarded as the focusing condition of this fourth-order image.

It is interesting to note that the non-factorized dependence of \mathcal{W} on $\boldsymbol{\rho}_s$ and $\boldsymbol{\rho}_i$ through \mathbf{R} is a consequence of the entanglement between signal and idler. In the context of the above approximations, it is easy to show that the single-count rates in each detector are independent of $\boldsymbol{\rho}_s$ and $\boldsymbol{\rho}_i$, showing no second-order imaging.

Now let us suppose that one of the detectors (say the idler), instead of being punctual, has an active area defined by the aperture function $\mathcal{A}(\boldsymbol{\rho}_i)$. In this case, the coincidence rate (12) must be integrated over \mathcal{A} :

$$C(\mathbf{r}_s) = \text{const} \times \int d\boldsymbol{\rho}_i \mathcal{A}(\boldsymbol{\rho}_i) \left| \mathcal{W} \left(\frac{\boldsymbol{\rho}_s}{\mu_s} + \frac{\boldsymbol{\rho}_i}{\mu_i}; Z_o \right) \right|^2. \quad (13)$$

This represents the convolution

$$C(\mathbf{r}_s) = \text{const} \times \mathcal{A} \left(\frac{\boldsymbol{\rho}_i}{\mu} \right) * \left| \mathcal{W} \left(\frac{\boldsymbol{\rho}_s}{\mu_s}; Z_o \right) \right|^2, \quad (14)$$

where $\mu = -\mu_i/\mu_s$. An interesting particular case of Eq. (14) occurs when Z_o lies on the focus of a lens placed in the Gaussian pump beam. In this situation, $\mathcal{W}(\mathbf{R}; Z_o)$ has a narrow Gaussian shape that can be approximated by $\delta(\mathbf{R})$, and the coincidence rate profile will reproduce the aperture function

$$C(\mathbf{r}_s) = \text{const} \times \mathcal{A} \left(-\frac{\boldsymbol{\rho}_s}{\mu_s} \right). \quad (15)$$

This kind of image was in fact observed by Pittman *et al.* [9].

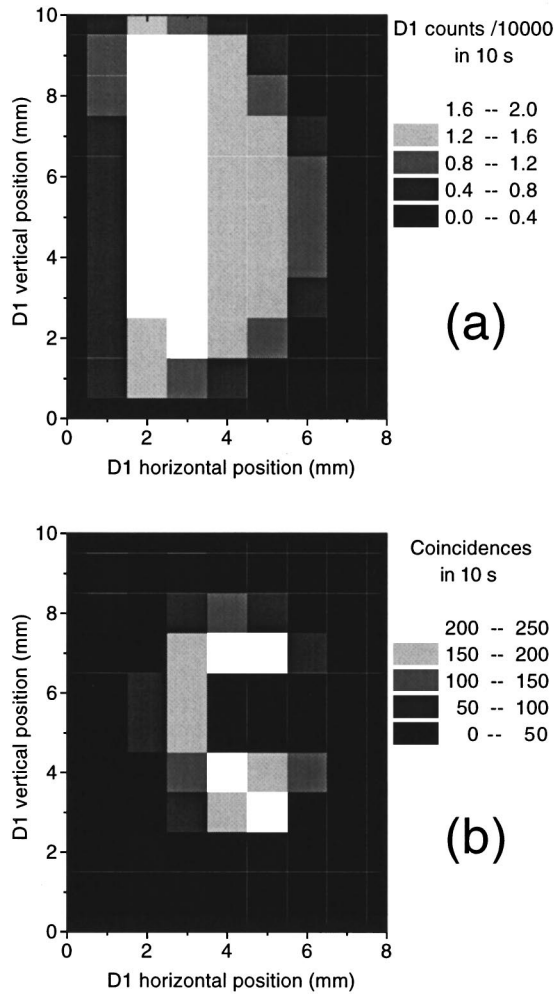


FIG. 2. Representation in density plots of the measured $D1$ single counts (a) and $D1$ - $D2$ coincidence counts (b) in a matrix of 8×10 pixels, with sampling times of 10 s per pixel. The image of a C-shaped aperture formed by the pump beam in the plane of the detectors is transferred to the coincidence profile.

An experiment, whose setup is shown in Fig. 1, was performed to demonstrate the angular spectrum and image transfer effect just described. A 7-mm-long BBO nonlinear crystal is pumped by a 100-mW argon laser operating at $\lambda_p = 351.1$ nm. The crystal, whose optical axis lies in a horizontal plane, is cut for collinear type-II phase matching, with $\lambda_s = \lambda_i = 702.2$ nm. The down-converted beams emerge from the crystal with orthogonal linear polarizations, and are separated from the pump by a uv mirror, placed right at the crystal output. A beam-splitter polarizer directs signal (here identified with the extraordinary polarization) and idler (ordinary) beams onto detectors $D1$ and $D2$, respectively, both mounted on X - Y micrometric translation stages. In front of each detector there is an arrangement composed by a variable aperture, which can be a slit or a circular orifice, followed by an interference filter of 1-nm bandwidth, and a microscope objective focused on the detector's active area. The response of this detection system as a function of the wave-vector incidence angle was measured with the help of an attenuated laser beam, and was found to be flat over an interval of 1.0° centered at 0° . Detectors $D1$ and $D2$ are connected to single and coincidence counters, with a resolving time of 10 ns.

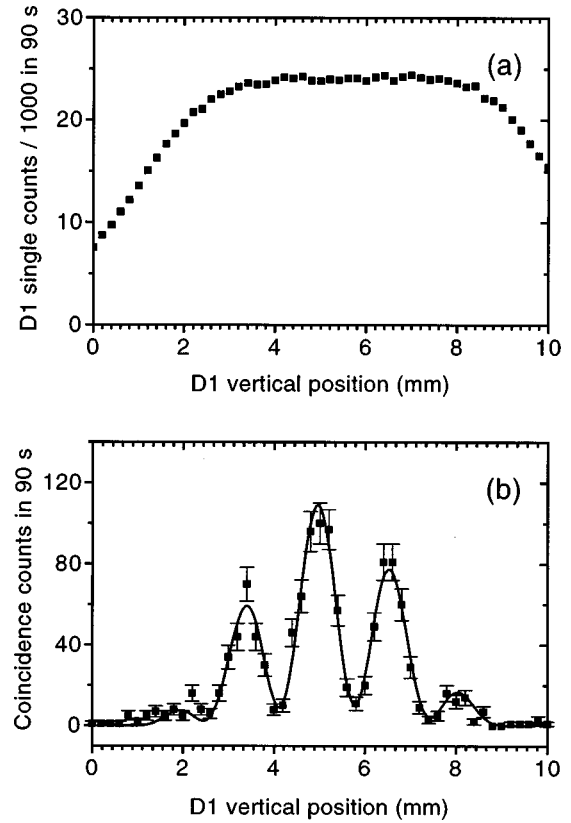


FIG. 3. Measured $D1$ single counts (a) and $D1$ - $D2$ coincidence counts (b) when a double slit is placed in the pump beam before it reaches the crystal, producing a Young interference pattern in the plane of the detectors. Each point corresponds to a sampling time of 90 s. The solid line is a fit of the double-slit interference pattern with visibility of 82%.

In the first measurement, Z_o was chosen to be 450 mm, and $\mu_s = \mu_i = 2$, that is, $z_s = z_i = Z_o$ as defined by expression (10). A lens of $f = 200$ mm was placed in the pump beam at 50 mm from the crystal in order to form, on the plane of the detectors, the image of an aperture placed 330 mm from it. The aperture was chosen to have roughly the shape of the letter C, with a 2-mm height, producing an image of about 3 mm in the plane of the detectors. Detectors entrance apertures were set to be circular orifices of 1-mm diameter. Detector $D2$ was held fixed, whereas $D1$ scanned a matrix of 8 mm horizontal by 10 mm vertical, in steps of 1 mm. Figure 2 shows a representation in density plots of the measured $D1$ single counts (a) and $D1$ - $D2$ coincidence counts (b) in a matrix of 8×10 pixels, with sampling times of 10 s per pixel. The fourth-order (coincidence) image of the aperture is clearly seen, with no second-order (single count) counterpart. The magnification factor of 2 is experimentally confirmed.

In a second experiment, the lens was removed, and two parallel slits 0.13 mm wide, separated by 0.33 mm, were placed in the pump beam, 310 mm from the crystal. This double slit produces Young interference fringes in the plane of the detectors. The entrance aperture of $D1$ and $D2$ were replaced by single slits 0.10 mm wide for $D1$ and 0.15 mm wide for $D2$, oriented parallel to the double slit (in the horizontal). $D2$ was held fixed as in the first experiment, while $D1$ was scanned vertically in steps of 0.2 mm. Figure 3 shows the results, with sampling times of 90 s per point.

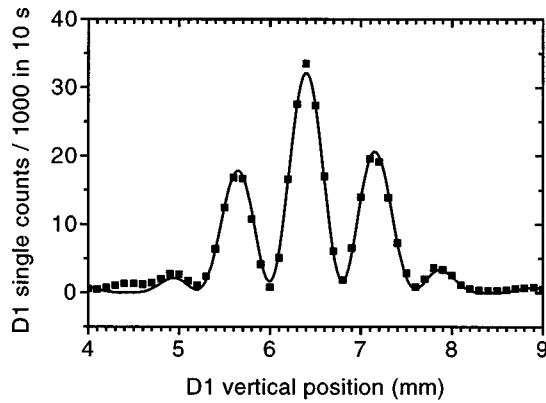


FIG. 4. The pump beam (uv) Young interference pattern measured by $D1$, with a fluorescent plastic behind its entrance slit. The solid line is a fit of the double-slit interference pattern, with a visibility of 89%.

Again, the fourth-order image shows up with no second-order counterpart. For comparison purposes, the pump beam interference pattern was registered by $D1$, and the results are shown in Fig. 4. For this measurement, the uv mirror was removed, the pump intensity reduced, and a thin transparent layer of fluorescent plastic was placed behind the $D1$ entrance slit. Comparing the interference pattern spatial period-

icity in Fig. 3(b) with the one of Fig. 4, we find a magnification of 2, in agreement with the theory.

Let us analyze some consequences of the angular spectrum transfer. It provides a simple way to control the transverse spatial correlation between signal and idler photons, which can be of interest in practically all experiments with spontaneous parametric down-conversion. For example, in experiments to test the hypothesis of local realism employing pairs of photons, part of the so-called *detection loophole* is due to the insufficient transverse correlation between the photon pairs, as discussed by Santos [16]. Although this correlation has been taken for granted in parametric down-conversion, and little attention has been paid to it in the most recent experiments [21,22], the present work shows that it is strongly dependent on the pump beam. According to the theory developed here, the pump beam can be manipulated in order to maximize the transverse correlation and close this part of the loophole [23].

The image transfer process can also be of interest in the field of quantum cryptography. After a suitable modification of the downconversion source, it might be used to distribute a *key* for a hole image, instead of a bit stream, in the same lines described in Ref. [19].

The authors acknowledge financial support from the Brazilian agencies CNPq and FINEP.

-
- [1] D. N. Klyshko, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **83**, 1313 (1982) [Sov. Phys. JETP **56**, 753 (1982)].
 - [2] D. N. Klyshko, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **94**, 82 (1988) [Sov. Phys. JETP **67**, 1131 (1988)].
 - [3] A. V. Belisnkiĭ and D. N. Klyshko, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. **105**, 487 (1998) [JETP **78**, 259 (1994)].
 - [4] T. P. Grayson and G. A. Barbosa, Phys. Rev. A **49**, 2948 (1994).
 - [5] P. H. S. Ribeiro, C. H. Monken, and G. A. Barbosa, Appl. Opt. **33**, 352 (1994).
 - [6] P. H. S. Ribeiro, S. Pádua, J. C. M. da Silva, and G. A. Barbosa, Phys. Rev. A **49**, 4176 (1994).
 - [7] T. B. Pittman, Y. H. Shih, D. V. Strekalov, and A. V. Sergienko, Phys. Rev. A **52**, R3429 (1995).
 - [8] D. V. Strekalov, A. V. Sergienko, D. N. Klyshko, and Y. H. Shih, Phys. Rev. Lett. **74**, 3600 (1995).
 - [9] T. B. Pittman *et al.*, Phys. Rev. A **53**, 2804 (1996).
 - [10] A. Joobeur, B. E. A. Saleh, T. S. Larchuk, and M. Teich, Phys. Rev. A **53**, 4360 (1996).
 - [11] P. H. S. Ribeiro and G. A. Barbosa, Phys. Rev. A **54**, 3499 (1996).
 - [12] M. Rubin, Phys. Rev. A **54**, 5349 (1996).
 - [13] J. Rehacek and J. Perina, Opt. Commun. **125**, 82 (1996).
 - [14] G. A. Barbosa, Phys. Rev. A **54**, 4473 (1996).
 - [15] For a review, see J. Perina, Z. Hradil, and B. Jurco, *Quantum Optics and Fundamentals of Physics* (Kluwer, Dordrecht, 1994).
 - [16] E. Santos, Phys. Rev. A **46**, 3646 (1992).
 - [17] P. G. Kwiat, P. H. Eberhard, A. M. Steinberg, and R. Y. Chiao, Phys. Rev. A **49**, 3209 (1994).
 - [18] *Quantum Interferometry*, edited by F. D. Martini, G. Denardo, and Y. Shih (VCH, Weinheim, 1996).
 - [19] A. K. Ekert, Phys. Rev. Lett. **67**, 661 (1991).
 - [20] C. K. Hong and L. Mandel, Phys. Rev. A **31**, 2409 (1985).
 - [21] J. R. Torgerson, D. Branning, C. H. Monken, and L. Mandel, Phys. Lett. A **204**, 323 (1995).
 - [22] P. G. Kwiat *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75**, 4337 (1995).
 - [23] An experiment in this subject is currently in progress in our group.

Anexo 2

Geometrically induced singular behavior of entanglement

D. Cavalcanti,¹ P. L. Saldanha,² O. Cosme,² F. G. S. L. Brandão,^{3,4} C. H. Monken,² S. Pádua,²
M. França Santos,² and M. O. Terra Cunha⁵¹ICFO—Institut de Ciències Fotoniques, Mediterranean Technology Park, 08860 Castelldefels, Barcelona, Spain²Departamento de Física, Universidade Federal de Minas Gerais, Caixa Postal 702, 30123-970, Belo Horizonte, Minas Gerais, Brazil³QOLS, Blackett Laboratory, Imperial College London, London SW7 2BW, United Kingdom⁴Institute for Mathematical Sciences, Imperial College London, London SW7 2BW, United Kingdom⁵Departamento de Matemática, Universidade Federal de Minas Gerais, Caixa Postal 702, 30123-970, Belo Horizonte, Minas Gerais, Brazil

(Received 31 August 2007; published 10 July 2008)

We show that the geometry of the set of quantum states plays a crucial role in the behavior of entanglement in different physical systems. More specifically, it is shown that singular points at the border of the set of unentangled states originate singularities in the dynamics of entanglement of smoothly varying quantum states. We illustrate this result by implementing a photonic parametric down-conversion experiment. Moreover, this effect is connected to recently discovered singularities in condensed matter models.

DOI: 10.1103/PhysRevA.78.012318

PACS number(s): 03.67.Mn, 02.40.Pc, 03.65.Ud

Entanglement, a genuine quantum correlation, plays a crucial role in different physical situations ranging from information processing [1] to quantum many-particle phenomena [2]. As in thermodynamics, smooth variations of controllable parameters which characterize a physical system may lead to singular behavior of entanglement quantifiers. In some cases, in similarity to quantum phase transitions [3], these singularities are attested by abrupt changes in the quantum state describing the system. However, unexpected singularities may appear even when the quantum state varies smoothly [4]. Here we demonstrate how the geometry of the set of unentangled states can be related to singular behavior in physical phenomena. In particular, we show that singularities at the boundary of this set can be detected by measuring the amount of entanglement of smoothly varying quantum states.

Entangled states are defined as the states of composed quantum systems which cannot be written as a convex sum of products of the density matrices for each composing part [5]. Separable states, on the other hand, admit such a representation and form a convex, closed set with positive volume (for finite-dimensional systems) [6]. This set, henceforth designated by S , is a subset of D , the set of all density matrices ($S \subset D$), which is also convex and closed. Therefore, a natural geometric way to quantify entanglement is to see how far—using some definition of distance on the state space—an entangled state is from the set S . This has been carried over for a variety of notions of distance, generating different measures of entanglement [7]. One of these geometric quantifiers is the random robustness R_R , defined for any state ρ as the minimum s ($s \geq 0$) such that the state

$$\sigma = \frac{\rho + sI/d}{1 + s} \quad (1)$$

is separable, where I is the identity matrix and d the total dimension of the state space [8]. The physical motivation is clear: σ represents a mixture of ρ with the random state I/d ,

and $R_R(\rho)$ quantifies how much of this noise must be added to ρ in order to obtain a separable state.

Our main result is to show that R_R can be used to investigate the shape of the boundary of S , ∂S . The principle is to take an entangled state depending smoothly on one parameter q and compute R_R as a function of q . The one-parameter-dependent density matrices $\rho(q)$ can be seen as a curve in the set of quantum states as shown in Fig. 1. Singularities at ∂S will show up as singularities in $R_R(\rho(q))$. This statement is general for any finite dimension and will be formalized by the contrapositive: if ∂S is nonsingular, then $R_R(\rho(q))$ is also nonsingular. This result will be formally proven in the Appendix and we emphasize its interpretation: *any singularity in R_R for a well-chosen path $\rho(q)$ reflects singularities in ∂S .*

Let us now focus on the case for two qubits, which is related to the experiment described here. In this case, Ref. [10] shows that the random robustness is proportional to the negativity ($\mathcal{N}(\rho)$) [11], given by the absolute value of the sum of the negative eigenvalues of the partially transposed state. The negativity is a monotone under local operations and classical communication [12] and has the operational interpretation of a cost function under a certain class of operations [13,14].

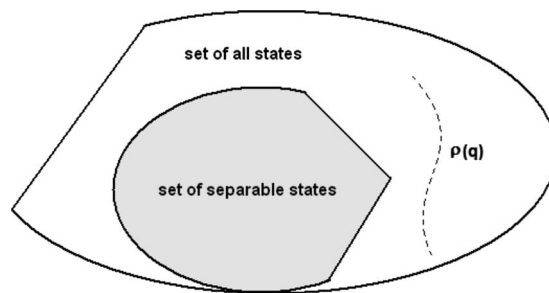


FIG. 1. State space. The dotted line represents the path $\rho(q)$ followed by ρ when the parameter q is changed. It is worth noting that S can present singular points in its shape and to remember that the “true” picture is much subtler, given the large dimensionality of even the simplest example [9].

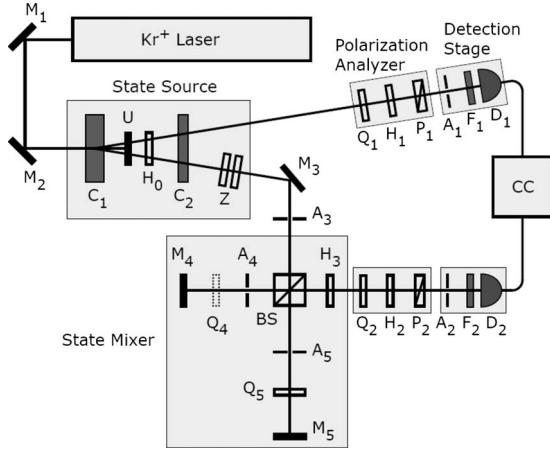


FIG. 2. Experimental setup: The state source is composed by a 2-mm-thick (β -BaB₂O₄) (BBO) nonlinear crystal (C_1) pumped by a cw krypton laser operating at 413 nm, generating photon pairs at 826 nm by type-II spontaneous parametric down-conversion. Crystal C_1 is cut and oriented to generate either one of the polarization-entangled Bell states $|\Psi_{-}\rangle$ or $|\Psi_{+}\rangle$. Walk-off and phase compensation is provided by the half-wave plate H_0 followed by a 1-mm-thick BBO crystal (C_2) [23], together with two 1-mm-thick crystalline quartz plates (z) inserted in one of the down-converted photon paths. The unconverted laser beam transmitted by crystal C_1 is discarded by means of a dichroic mirror (u). The detection stages are composed by photon counting diode modules D_1 and D_2 , preceded by 8 nm full width at half maximum interference filters F_1 and F_2 centered at 825 nm, and by circular apertures A_1 of 1.6 mm \varnothing and A_2 of 3.0 mm \varnothing . Single and coincidence counts with 5 ns resolving time are registered by a computer-controlled electronic module (CC). Polarization analyzers are composed of quarter-wave plates Q_1 and Q_2 , half-wave plates H_1 and H_2 , followed by polarizing cubes P_1 and P_2 . The state source produces state $|\Psi_{-}\rangle$. For each pair, the photon emerging in the upper path goes straight to the polarization analyzer and to the detection stage 1. The lower-path photon is directed by mirror M_3 through the circular aperture A_3 into the state mixer (an unbalanced Michelson interferometer), composed by the beam splitter BS, mirrors M_4 and M_5 , quarter-wave plates Q_4 and Q_5 , variable circular apertures A_4 and A_5 , and by the half-wave plate H_3 , whose purpose is to compensate for an unwanted slight polarization rotation caused by the beam splitter. The quarter-wave plate Q_4 is switched off, which means that if the lower photon follows the path labeled 4, there is no change to its polarization and the half-wave plate H_3 changes the state to $|\Psi_{+}\rangle$. On the other hand, if the lower photon follows the path labeled 5, Q_5 is oriented with the fast axis at 45° in order to flip its polarization. The path length difference, 130 mm, is much larger than the coherence length of the down-converted fields, ensuring an incoherent recombination at BS. The pair detected by CC is in state $q|\Psi_{+}\rangle\langle\Psi_{+}| + (1-q)|\Phi_{+}\rangle\langle\Phi_{+}|$, where q is defined by the relative sizes of apertures A_4 and A_5 .

At the same time, entanglement can be measured with the help of entanglement witnesses [15]. These are Hermitian operators with positive mean value for all separable states, but with a negative mean value for some entangled states [16]. In fact, many geometrical entanglement quantifiers are directly related to witness operators [17]. In the particular

case of two qubits,¹ we have that for every entangled state ρ [10],

$$2\mathcal{N}(\rho) = R_R(\rho) = -2 \min_{W \in \mathcal{W}} \text{Tr}(W\rho), \quad (2)$$

where \mathcal{W} is the set of entanglement witnesses W with $\text{Tr} W = 2$.

At this point we might ask some natural questions. Is there in fact any singularity in the shape of S ? In the affirmative case, does this singularity appear in any physical setup? We proceed to answer both questions positively by showing physical processes where a singularity in ∂S is revealed by monitoring the entanglement of a given system.

First, let us consider a general system of four qubits a, b, A , and B , subject to the following Hamiltonian [19]:

$$H = H^{aA} + H^{bB}, \quad (3)$$

where

$$H^{\mu\nu} = \frac{\omega}{2} \sigma_z^\mu + \frac{\omega}{2} \sigma_z^\nu + \frac{g}{2} (\sigma_-^\mu \sigma_+^\nu + \sigma_+^\mu \sigma_-^\nu). \quad (4)$$

Here $\sigma_+ = (\sigma_x + i\sigma_y)/2$ and $\sigma_- = (\sigma_x - i\sigma_y)/2$, where σ_x , σ_y , and σ_z are the usual Pauli matrices. This scenario can be realized in many systems, like cavity QED [20], trapped ions [21], and quantum dots [22]. We set the initial state to be $|\psi(t=0)\rangle = |\Phi_{+}\rangle_{ab} \otimes |\Psi_{+}\rangle_{AB}$, where the qubits ab are in the Bell state $|\Phi_{+}\rangle = (|00\rangle + |11\rangle)/\sqrt{2}$ and the qubits AB are in the orthogonal Bell state $|\Psi_{+}\rangle = (|01\rangle + |10\rangle)/\sqrt{2}$. The Hamiltonian (3) induces a swapping process which leads (in the interaction picture) to the following temporal evolution for the subsystem AB , obtained by tracing out the subsystem ab :

$$\rho_{AB}(t) = q|\Psi_{+}\rangle\langle\Psi_{+}| + (1-q)|\Phi_{+}\rangle\langle\Phi_{+}|, \quad (5)$$

where $q = \cos^2(gt)$. For this state the negativity reads

$$\mathcal{N}(\rho_{AB}(t)) = \max\{1 - 2q, 2q - 1\} = |1 - 2q|. \quad (6)$$

This function presents a singularity for $q = 0.5$ ($gt = n\pi/4$, with n odd) signaling then a singularity at ∂S .

Another physical process that also produces the family of states (5) is the following simple quantum communication task. Alice prepares a Bell state $|\Phi_{+}\rangle$ and sends one qubit to Bob through a quantum channel; if this channel has a probability q of introducing a bit flip, and $1-q$ of no error at all, the state (5) is the output of the process.²

¹An optimal entanglement witness W_{opt} satisfying (2) is proportional to the partial transposition of the projector over the eigenspace of the negative eigenvalue of ρ^{T_2} , where ρ^{T_2} denotes the partial transposition of ρ [18].

²The simplest way of drawing the complete line represented by Eq. (5) is to consider three different initial conditions: from $|\Phi_{+}\rangle$ one obtains $q \in [0, 1/2)$, from $|\Psi_{+}\rangle$, $q \in (1/2, 1]$, and $q = 1/2$ is a fixed point of this dynamical system.

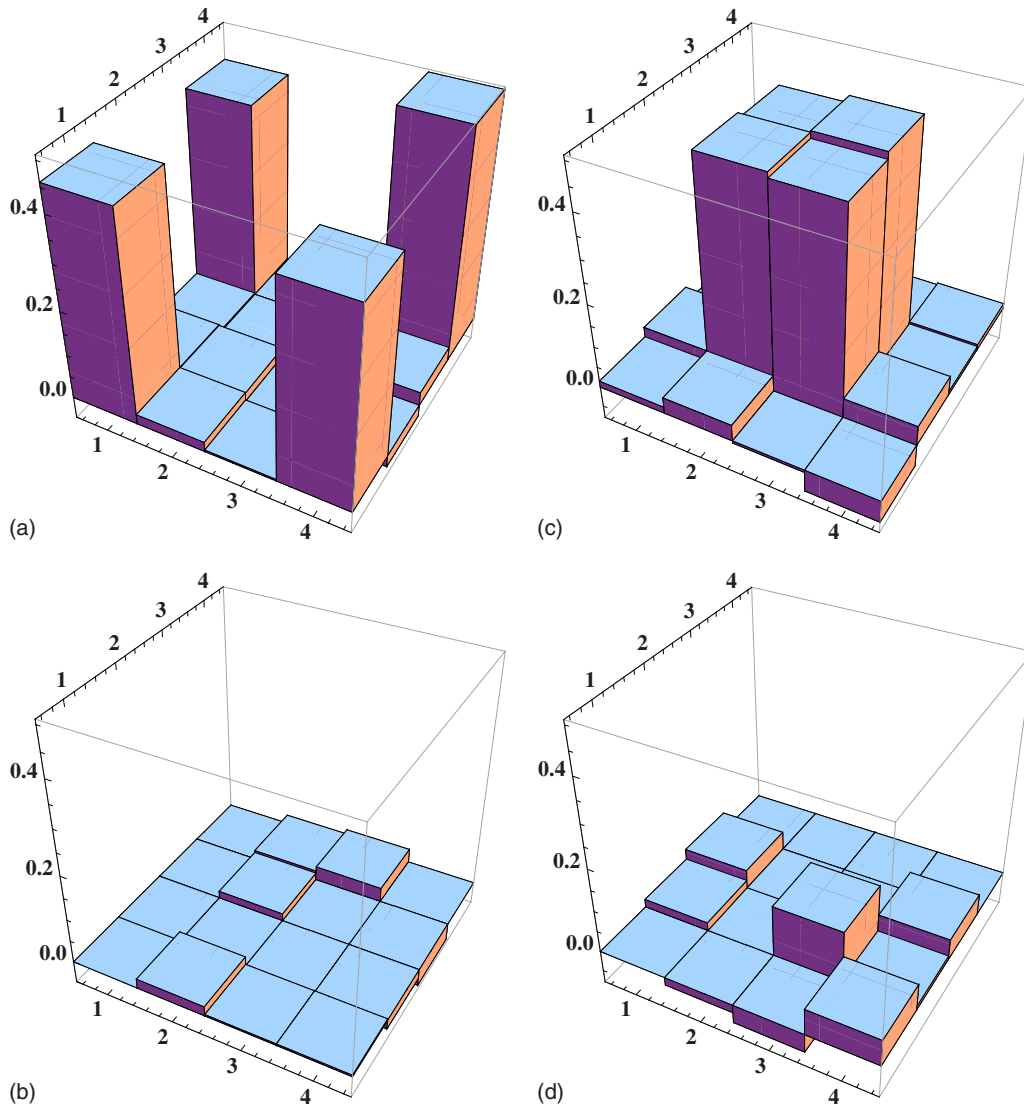


FIG. 3. (Color online) Reconstructed density matrices corresponding (ideally) to the states $|\Phi_+\rangle$, (a) real and (b) imaginary parts, and $|\Psi_+\rangle$, (c) real and (d) imaginary parts. The attained fidelities for these states are, respectively, $F_{\Phi_+} \equiv \langle \Phi_+ | \rho | \Phi_+ \rangle \approx (92 \pm 4)\%$ and $F_{\Psi_+} \equiv \langle \Psi_+ | \rho | \Psi_+ \rangle \approx (96 \pm 4)\%$.

To illustrate the dynamics given by Eq. (5), we have performed an optical experiment, shown in Fig. 2. In our experiment, twin photons maximally entangled in polarization are generated in a nonlinear crystal [23] and sent to an unbalanced Michelson interferometer, which is used to simulate the channel described above. The experiment works as follows. We produce a two-photon $|\Psi_+\rangle$ state, and send one of the photons directly to the detection stage and the other to the (unbalanced) interferometer. One of the arms of this interferometer does not change the polarization of the photon, and if the photon went through this path the two photons would be detected in $|\Psi_+\rangle$. However, if the photon went through the other path its polarization would be rotated in such a way that the final two-photon state would become $|\Phi_+\rangle$. We have made a tomographic characterization of the photonic states corresponding to these two extremal points. The reconstructed density matrices are displayed in Fig. 3. These two possibilities are then incoherently recombined,

thus allowing the preparation of state (5). The parameter q is controllable, and the experiment is repeated for different values of q . The corresponding optimal witness is given by

$$W_{\text{opt}} = \begin{cases} I - 2|\Phi_+\rangle\langle\Phi_+| & \text{for } 0 \leq q \leq 1/2, \\ I - 2|\Psi_+\rangle\langle\Psi_+| & \text{for } 1/2 \leq q \leq 1. \end{cases} \quad (7)$$

For the family of generated states these two observables are the only candidates for optimal entanglement witnesses, so they are the only ones to be measured. In a more general situation, if less is known about the prepared state, many more candidate witnesses should be measured. The results are displayed in Fig. 4. The blue (continuous) curve in the figure shows the witnessed negativity measurement and its edge indicates the existence of singularities at ∂S . This experimental result shows the abrupt change in the optimal witness at the value $q = \frac{1}{2}$, which heralds the singularity in ∂S . As a proof of principles, each operator W is measured for the

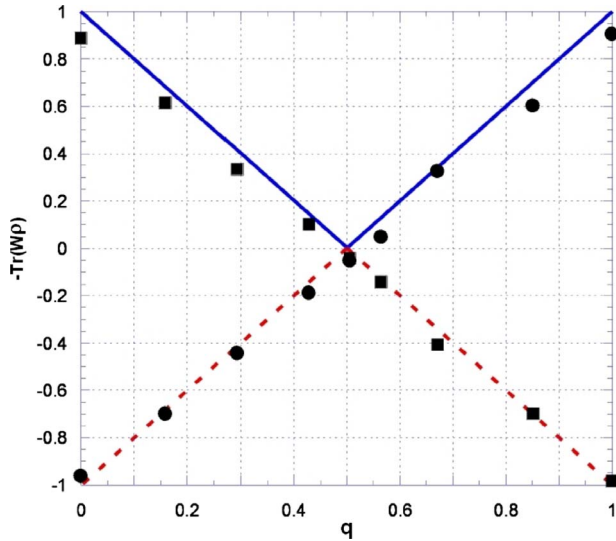


FIG. 4. (Color online) Measurement of the mean value of both operators described in (7) for the full range $0 \leq q \leq 1$. Each W is expanded as a linear combination of products of local operators which are then measured independently. The blue continuous line corresponds to the theoretical value of $\mathcal{N}(\rho(q))$ for the state $\rho(q) = q|\Psi_+\rangle\langle\Psi_+| + (1-q)|\Phi_+\rangle\langle\Phi_+|$. Note that each W witnesses entanglement for only a restricted range of q values as predicted by the theory. The local singularity of ∂S is evidenced by the abrupt change of optimal W . Experimental errors are within the dots' sizes.

whole range of q , which yields the points below zero in Fig. 4. Note that the singularity occurs exactly for $R_R=0$ ($q=1/2$). According to our geometrical interpretation, this means that the path followed by the parametrized state $\rho(q)$ touches the border of S . This result should not be a surprise, since it is well known that in the tetrahedron generated by the Bell states (which we access in our experiment) the separable states form an inscribed octahedron [24]. It must be stressed that in higher dimensions geometrically induced singularities can occur at nonzero entanglement values.

The geometrical properties of entanglement discussed here give new insight into singularities found recently in the entanglement of condensed matter systems. Striking examples, dealing with entanglement properties of certain spin- $\frac{1}{2}$ models subjected to a transverse magnetic field h , are described in Refs. [4]. In these works, the two-qubit reduced state shows a singularity in entanglement for a particular field value h_f far from the critical field of the corresponding model. As the correlation functions, ground state energy, and even reduced density matrices are all smooth at h_f , there was no clear origin for these singularities. Our results offer an explanation by interpreting the nonanalyticities exhibited by entanglement as a consequence of geometric singularities at ∂S .³

As previously mentioned, R_R can be used to probe ∂S in

³Although the results of Refs. [4] were obtained in terms of the concurrence, a completely analogous result holds for the negativity as well

any finite-dimensional system. For example, a previous work showed a singular behavior of R_R in three-qubit systems [10]. Within the scope of our paper, we can interpret it as originated by a singularity at the border of the corresponding separable set. Note, however, that in this case, due to the higher dimensionality of the system, the singularity at ∂S manifests itself far away, at a point with positive random robustness.

To sum up, we have presented the consequences found of the shape of the set of separable states. Singularities in this set were found and connected to nonanalytical behavior of entanglement in different physical systems. It is an interesting open question to find physical implications of such singularities.

We acknowledge discussions with A. Acín, A. Sen(De), J. Wehr, E. Rico, G. Palacios, V. Vedral, and J. Dunningham and funding from CNPq, Fapemig, PRPq-UFMG, and the Brazilian Millenium Institute for Quantum Information.

APPENDIX

Here we formally prove that R_R can detect singularities in ∂S . We state it as a general proposition for convex sets, but the reader will naturally recognize the context.

Proposition 1. Let D be a closed, convex set. Let $S \subset D$ also be closed and convex, with π a point in the interior of S . If ∂S is a C^m manifold and the states $\rho(q)$ describe a C^m curve in D with no points in the interior of S and obeying the condition that the tangent vector $\rho'(q)$ is never parallel to $\pi - \rho(q)$, then $R_R(\rho(q))$ is also a C^m function.

A manifold is called C^m if it can be parametrized by functions with continuous derivatives up to order m [25]. The reader can change C^m to C^∞ , with almost no loss (actually, we choose C^m as being “as regular as necessary”). Other topological remarks before the proof: the fact that S has interior points implies that S and D have the same dimensionality (since there is an open ball of D contained in S), and the proof will use the notion of the (topological) cone, which simply means the union of all segments from a given point V to each point of a given set A ; this is called the cone of A with vertex V .

Proof. The geometrical situation leads to the cone given by $(p, q) \mapsto p\pi + (1-p)\rho(q)$, $p \in [0, 1]$. The condition on the tangent vector [together with the fact that π is interior to S , while $\rho(q)$ has no point in this interior] is sufficient for this cone to be C^m , except at the vertex π , at least locally in q .

As S is bounded and convex, and π is in its interior, every straight line from π crosses ∂S exactly once. As $\rho(q)$ has no point in the interior of S , this crossing always happens for $0 \leq p < 1$. Denote this crossing value by $p_c(q)$. The curve $q \mapsto p_c(q)\pi + [1-p_c(q)]\rho(q)$ is C^m , implying that p_c is a C^m function of q .

The random robustness is given by $R_R(\rho(q)) = \frac{p_c}{1-p_c}$. As $p_c < 1$, we also obtain that R_R is a C^m function of q . ■

- [1] A. K. Ekert, Phys. Rev. Lett. **67**, 661 (1991).
- [2] L. Amico, R. Fazio, A. Osterloh, and V. Vedral, Rev. Mod. Phys. **80**, 517 (2008).
- [3] T. J. Osborne and M. A. Nielsen, Phys. Rev. A **66**, 032110 (2002); A. Osterloh, L. Amico, G. Falci, and R. Fazio, Nature (London) **416**, 608 (2002).
- [4] A. Osterloh, G. Palacios, and S. Montangero, Phys. Rev. Lett. **97**, 257201 (2006); T. Roscilde, P. Verrucchi, A. Fubini, S. Haas, and V. Tognetti, *ibid.* **93**, 167203 (2004); T. Roscilde, P. Verrucchi, A. Fubini, S. Haas, and V. Tognetti, *ibid.* **94**, 147208 (2005).
- [5] R. F. Werner, Phys. Rev. A **40**, 4277 (1989).
- [6] K. Życzkowski, P. Horodecki, A. Sanpera, and M. Lewenstein, Phys. Rev. A **58**, 883 (1998).
- [7] R. Horodecki, P. Horodecki, M. Horodecki, and K. Horodecki, arXiv:quant-ph/0702225; M. B. Plenio and S. Virmani, Quantum Inf. Comput. **7**, 1 (2007).
- [8] G. Vidal and R. Tarrach, Phys. Rev. A **59**, 141 (1999).
- [9] I. Bengtsson and K. Życzkowski, *Geometry of Quantum States: An Introduction to Quantum Entanglement* (Cambridge University Press, Cambridge, U.K., 2006).
- [10] F. G. S. L. Brandão and R. O. Vianna, Int. J. Quantum Inf. **4**, 331 (2006).
- [11] G. Vidal and R. F. Werner, Phys. Rev. A **65**, 032314 (2002). Note that in our work the negativity for two qubits runs from 0 to 1.
- [12] J. Eisert, Ph.D. thesis, University of Potsdam, 2001, e-print arXiv:quant-ph/0610253.
- [13] K. Audenaert, M. B. Plenio, and J. Eisert, Phys. Rev. Lett. **90**, 027901 (2003).
- [14] S. Ishizaka, Phys. Rev. A **69**, 020301(R) (2004).
- [15] M. Barbieri, F. DeMartini, G. DiNepi, P. Mataloni, G. M. D'Ariano, and C. Macchiavello, Phys. Rev. Lett. **91**, 227901 (2003); O. Gühne *et al.*, J. Mod. Opt. **50**, 1079 (2003); M. Bourennane, M. Eibl, C. Kurtsiefer, S. Gaertner, H. Weinfurter, O. Gühne, P. Hyllus, D. Bruss, M. Lewenstein, and A. Sanpera, Phys. Rev. Lett. **92**, 087902 (2004); D. Cavalcanti and M. O. Terra Cunha, Appl. Phys. Lett. **89**, 084102 (2006); K. Audenaert and M. B. Plenio, New J. Phys. **8**, 266 (2006); O. Gühne, M. Reimpell, and R. F. Werner, Phys. Rev. Lett. **98**, 110502 (2007); J. Eisert, F. G. S. L. Brandão, and K. M. R. Audenaert, New J. Phys. **9**, 46 (2007).
- [16] M. Horodecki, P. Horodecki, and R. Horodecki, Phys. Lett. A **223**, 1 (1996); B. M. Terhal, *ibid.* **271**, 319 (2000).
- [17] F. G. S. L. Brandão, Phys. Rev. A **72**, 022310 (2005).
- [18] M. Lewenstein, B. Kraus, J. I. Cirac, and P. Horodecki, Phys. Rev. A **62**, 052310 (2000).
- [19] D. Cavalcanti, J. G. Oliveira Jr, J. G. Peixoto de Faria, M. O. Terra Cunha, and M. F. Santos, Phys. Rev. A **74**, 042328 (2006).
- [20] J. M. Raimond, M. Brune, and S. Haroche, Rev. Mod. Phys. **73**, 565 (2001).
- [21] M. D. Barrett *et al.*, Nature (London) **429**, 737 (2004).
- [22] W. D. Oliver, F. Yamaguchi, and Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. **88**, 037901 (2002).
- [23] P. G. Kwiat, K. Mattle, H. Weinfurter, A. Zeilinger, A. V. Sergienko, and Y. Shih, Phys. Rev. Lett. **75**, 4337 (1995).
- [24] R. Horodecki and M. Horodecki, Phys. Rev. A **54**, 1838 (1996).
- [25] M. Spivak, *Calculus on Manifolds: A Modern Approach to Classical Theorems of Advanced Calculus* (W.A. Benjamin, New York, 1965).

Anexo 3

Coherent control with photon states

I. Rodrigues¹, O. Cosme², C. H. Monken², and S. Pádua²

¹*Departamento de Química, Universidade Federal de Minas Gerais,
Caixa Postal 702, 31270-901 Belo Horizonte MG, Brazil. and*

²*Departamento de Física, Universidade Federal de Minas Gerais,
Caixa Postal 702, 30123-970 Belo Horizonte MG, Brazil.*

(Dated: 5th June 2009)

Abstract

The 2-photon absorption by a molecule when photons are prepared in a high dimension entangled state is studied. An expression for the 2-photon absorption cross section is obtained. The light field is prepared in a spatial qudit state and its interaction with two level system of a molecule showed new interference effects observed in the absorption cross section. Oscillations in the absorption cross section show its dependence with the path phases of the qudit state. The 2-photon absorption cross section is shown to be dependent on the dimension of the photon qudit state.

PACS numbers:

I. INTRODUCTION

The eminent chemist Robert B. Woodward told *The synthesis of substances occurring in Nature, perhaps in greater measure than activities in any other area of organic chemistry, provides a measure of the condition and power of the science. For synthetic objectives are seldom if ever taken by chance, nor will the most painstaking, or inspired, purely observational activities suffice. Synthesis must always be carried out by plan, and the synthetic frontier can be defined only in terms of the degree to which realistic planning is possible, utilizing all of the intellectual and physical tools available. It can scarcely be gainsaid that the successful outcome of a synthesis of more than thirty stages provides a test of unparalleled rigor of the predictive capacity of the science, and of the degree of its understanding of its portion of the environment.* [1]. This thought illustrates the dichotomy between chemical knowledge and control of matter. These ideas have been followed by chemists throughout history. Recently C. Daniel *et. al.* [2] showed that a simple reaction was controlled with laser and the reaction mechanism of the algorithm of optimal control [3] was interpreted in terms of quantum mechanics. If we can work with math operators and vectors in the Hilbert space and through them find the target product, maybe we would be beyond the concept of Woodward. In the same way as chemistry, science as a whole tries to demonstrate its knowledge of matter through the control of the nature phenomena. One of the important approaches in this direction is the use of an electromagnetic field for controlling the interaction between matter and light, known as coherent control [4, 5]. This approach has been used in many successful applications such as electronic transition in atoms [6], spins [8, 9], two-photon absorption [7], and molecular dissociation [10]. In the molecular interaction, the coherent control is the manipulation of the superposition of classical electromagnetic fields by varying their frequencies and phases which creates possible molecular absorption pathways producing destructive and constructive interference between them. So far the semiclassical treatment have been the horizon of the coherent control for molecular transition.

Atomic and molecular transition have been studied intensively since the end of the XIX century. Besides the academic interest, many applications have been developed [11]. Multi-photon absorption, developed only after the laser discovery, constitutes a field with a wide variety of applications as non-destructive imaging, three-dimensional optical data storage,

and photodynamic therapy [12]. Many ideas have been suggested to increase the efficiency of these phenomena like the synthesis of organic molecules with increased cross-sections and the shaping of the laser pulses [7]. The last case is one of the best examples of the use of coherent control. However, many theoretical and experimental works have shown nonclassical properties of the electromagnetic field. One of these phenomena is the increase of absorption probability of n -photons, by a factor of $n!$, due to the bunching of photons in incoherent light beam [13]. Another effect, is the suppression of second harmonic generation for entangled photons in an anti-bunching state of light [14]. The multiphoton-absorption rate for entangled-photons increases linearly with the photon flux density, different from the non correlated photons absorption rate which increases proportionally to the n -th power of the photon flux density [15–19]. The two-photon absorption process with linear absorption dependence is also observed with squeezed-state light [20, 21]. On the other hand the answer for the question of whether control state of photons is relevant for the transition pathway in molecules or atoms, is still not given. Here, we address for this problem in two-photon absorption when the photon states are entangled in high dimensions. A theoretical treatment of nonlinear absorption by a light source comprising entangled photons generated by n photon parametric down conversion was previously done [15–17]. This particular source of photons is interesting for two-photon absorption because its quantum states are entangled. The absorption cross section presents also a linear dependence on the photon flux densities. In this article, we investigate the properties of the two photon absorption of a 2-photon state entangled in higher dimensions, a two photon qudit entangled state (the quantum state lying in a D -dimensional ($D \geq 3$) Hilbert space) [22]. The absorption cross section shows that the absorption rate varies by changing the phases of the 2-photon qudit state superposition. Finally, we discussed the effects of the increase of the state dimension showing that the absorption cross section is proportional to the dimension of the qudit state. The phase control in the quantum state furnishes unusual results when compared with the classical expectation.

II. THE 2-PHOTON ABSORPTION

In Fig. 1, we show a description of the usual technique of coherent control in (a) and our proposal in (b). Usually we format the classical laser pulse (shaper) and evaluate the

transitions on the sample [10], by detecting the sample response (analyzer). In Fig. 1 (b), we propose to generate an entangled 2-photon qudit state and measure its interaction with a sample via the measurement of the 2-photon cross section absorption. The increase of the Hilbert space dimension of the 2-photon state causes the appearance of new interference effects in the absorption cross-section.

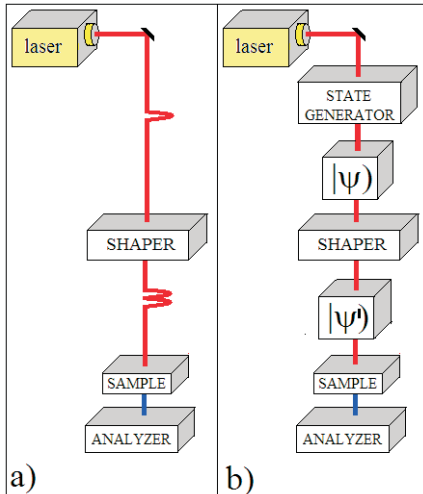


Figure 1: (a) a laser beam pulse is formatted in a shaper, interacts with a sample, and the multi-photon absorption cross section is measured via the fluorescence analyzer; (b) Light in a 2-photon entangled qudit quantum state $|\psi'\rangle$ interacts with a sample and the 2-photon absorption cross section is measured as a function of the phases as the 2-photon qudit state.

III. THE ABSORPTION CROSS SECTION OF A 2-PHOTON MOMENTUM QUDIT STATE

The absorption cross section of n-photons is proportional to the probability $p_{f\leftarrow i}$ that an electron in a target (a molecule, for example) makes a transition from the initial state $|i\rangle$ to the final state $|f\rangle$ through n-photon absorption (see the work of Perina *et. al.*, in reference [15]). This probability is provided by nth-order time-dependent perturbation theory [11]

$$p_{f\leftarrow i} = \left| \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle f | \hat{U}_{\text{int}}(t) | i \rangle \right|^2. \quad (1)$$

The interaction hamiltonian in the interaction representation is

$$\hat{H}_{\text{int}}(t) = \hat{d}(t)\hat{E}^{(+)}(t) + H.c. \quad (2)$$

where $\hat{d}(t)$ is the dipole moment operator of an electron in the target at the time t , *H.c.* stands for hermitian conjugate and the positive part of the electric field operator $\hat{E}^{(+)}(t)$ at time t is

$$\hat{E}^{(+)}(t) = \sum_{j=1}^n \hat{E}_j^{(+)}(t), \quad (3)$$

where $\hat{E}_j^{(+)}(t)$ is the positive part of the electric field operator of photon j with frequency centered around ω_j^0 .

It was shown in reference [15] that for a n -photon entangled state, the probability $p_{f \leftarrow i}$ is

$$\begin{aligned} p_{f \leftarrow i} &= \left| \frac{1}{(\hbar)^n} \int_{-\infty}^{\infty} dt_n \int_{-\infty}^{t_n} dt_{n-1} \dots \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \times \right. \\ &\quad \times \langle f | \hat{d}(t_n) \dots \hat{d}(t_1) | i \rangle \\ &\quad \times \langle \text{vac} | \hat{E}_n^{(+)}(t_n) \dots \hat{E}_1^{(+)}(t_1) | \psi^{(n)} \rangle \left. \right|^2, \end{aligned} \quad (4)$$

where the initial state of the optical field is $|\psi^{(n)}\rangle$ and the final state is the vacuum state, $|\text{vac}\rangle$.

From the above absorption probability, it is shown in references [15, 17] that the n -photon absorption cross section $\sigma(T_{21})$ is

$$\begin{aligned} \sigma(T_{21}) &\approx |\delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i - \omega_1^0 - \omega_2^0) \\ &\quad \sum_{j_1} d_{fj_1}^2 d_{j_1i}^1 \frac{1 - e^{i(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)}}{(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)}|^2 \end{aligned} \quad (5)$$

Now let us suppose that we can produce a 2-photon qudit space state, written in the momenta base as [22–24] in the limit of wide slits.

$$\begin{aligned} |\psi^{(2)}\rangle &= \sqrt{1 - |\alpha_2|^2 - |\alpha_3|^2 - \dots - |\alpha_m|^2} |k_1\rangle |k_m\rangle \\ &\quad + e^{i\phi_2} \alpha_2 |k_2\rangle |k_{m-1}\rangle + \dots + e^{i\phi_m} \alpha_m |k_m\rangle |k_1\rangle, \end{aligned} \quad (6)$$

where $|k_1, k_m\rangle$ contains one photon in mode k_1 and one photon in mode k_m , α_i is a normalized complex constant and ϕ_i is a general phase. By inserting Eq. (6) into Eqs. (4), we obtain the

following absorption cross section.

$$\begin{aligned}
\sigma(T_{21}) \approx & |\delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i - \omega_1^0 - \omega_2^0)| \\
& \sum_{j_1} d_{fj_1}^2 d_{j_1i}^1 \frac{1 - e^{i(\varepsilon_{fj} - \varepsilon_{j_1} - \omega_1^0)}}{(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)}|^2 \\
& |\sqrt{1 - |\alpha_2|^2 - |\alpha_3|^2 - \dots - |\alpha_m|^2} \\
& + e^{i\phi_2} \alpha_2 + \dots + e^{i\phi_m} \alpha_m}|^2
\end{aligned} \tag{7}$$

Here $d_{j_1j_2}^j$ denotes the matrix element of the dipole-moment operator between the electron states j_1 and j_2 for the direction given by the polarization of the j_{th} photon, and $\hbar\varepsilon_j$ is the energy of the j_{th} electron eigenstate. The summation over j_1 in Eq. (7) reflects the usual quantum interference arising from the indistinguishability of contributions from different intermediate state transitions.

Let us suppose that the generated 2-photon state is a two photon quantum qudit with dimension 3:

The following state is a general qutrit state with two photons

$$\begin{aligned}
|\psi^{(2)}\rangle = & \cos(\theta)|k_1k_{-1}\rangle \\
& + e^{i\phi_1} \sin(\theta) \cos(\varphi)|k_0k_0\rangle \\
& + e^{i\phi_2} \sin(\theta) \sin(\varphi)|k_{-1}k_1\rangle.
\end{aligned} \tag{8}$$

Where φ and θ are normalization parameter. The cross section $\sigma(T_{21})$ for this case is

$$\begin{aligned}
\sigma(T_{21}) \approx & |\delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i - \omega_1^0 - \omega_2^0)| \\
& \sum_{j_1} d_{fj_1}^2 d_{j_1i}^1 \frac{1 - e^{i(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)T_{21}}}{(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)T_{21}} \\
& (\cos(\theta) + e^{i\phi_1} \sin(\theta) \cos(\varphi) \\
& + e^{i\phi_2} \sin(\theta) \sin(\varphi))|^2,
\end{aligned} \tag{9}$$

Where T_{21} is the difference between the time of arrival of the first and second photons. The above expression for the absorption cross section can be further simplified by assuming that the transition from the initial to a given j_1 level prevails in the interaction with the photon

at ω_1 , for the case of the maximally quantum entangled states Eq. (9)

$$\begin{aligned} \sigma(T_{21}) \approx & \left| \text{sinc}[T_{21}(\varepsilon_{j1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)] \right. \\ & [1 + \sin(2\theta)(\cos(\varphi) \cos(\phi_1) \\ & + \sin(\varphi) \cos(\phi_2)) \\ & \left. + \sin(\theta)^2 \sin(2\varphi) \cos(\phi_1 - \phi_2)] \right|^2. \end{aligned} \quad (10)$$

For the case of a the maximum entangled quantum states where, $\cos(\theta) = \sin(\theta) \cos(\varphi) = \sin(\theta) \sin(\varphi) = \frac{1}{\sqrt{3}}$, we obtain

$$\begin{aligned} \sigma(T_{21}) \approx & \left| \text{sinc}[T_{21}(\varepsilon_{j1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)] \right|^2 \\ & \times \left[1 + \frac{2}{3}(\cos(\phi_1) + \cos(\phi_2) \right. \\ & \left. + \cos(\phi_1 - \phi_2)) \right]^2. \end{aligned} \quad (11)$$

Fig. 2 shows the dependence of the cross section of the two-photon absorption with the ϕ_1 and ϕ_2 phases, for the case of the maximum qutrit entangled state Eq. (10).

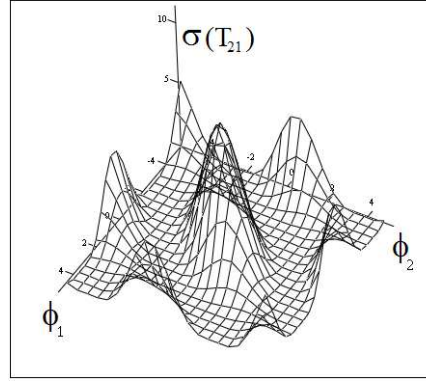


Figure 2: *Cross section of two-photon absorption versus ϕ_1 and ϕ_2 phases (horizontal plane).*

The maximum value that can be obtained for Eq. (12) (when $\phi_1 = \phi_2 = 0$), is

$$\sigma(T_{21}) \approx 3 \left| \text{sinc}[T_{21}(\varepsilon_{j1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)] \right|^2, \quad (12)$$

for the state

$$|\psi^{(2)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(|k_1 k_{-1}\rangle + |k_0 k_0\rangle + |k_{-1} k_1\rangle). \quad (13)$$

and

$$\sigma(T_{21}) \approx \frac{1}{3} \left| \text{sinc}[T_{21}(\varepsilon_{j1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)] \right|^2, \quad (14)$$

for the following state

$$|\psi^{(2)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}(|k_1 k_{-1}\rangle + |k_0 k_0\rangle - |k_- k_1\rangle). \quad (15)$$

The simplest two photon state is the qubit. The following state represents a general two photon qubit state

$$|\psi^{(2)}\rangle = \cos(\theta)|k_1 k_2\rangle + e^{i\phi} \sin(\theta)|k_2 k_1\rangle \quad (16)$$

Where ϕ is a general phase.

The cross section $\sigma(T_{21})$ for this case is

$$\begin{aligned} \sigma(T_{21}) &\approx |\delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i - \omega_1^0 - \omega_2^0) \\ &\sum_{j_1} d_{fj_1}^2 d_{j_1 i}^1 \frac{1 - e^{i(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)T_{21}}}{(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)T_{21}} \\ &(\cos(\theta) + e^{i\phi} \sin(\theta))|^2 \end{aligned} \quad (17)$$

After simplifying it we obtain

$$\begin{aligned} \sigma(T_{21}) &\approx |\text{sinc}[T_{21}(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)]|^2 \\ &\times (1 + \sin(2\theta) \cos(\phi)), \end{aligned} \quad (18)$$

and for $\theta = \pi/4$ in eq (17), the cross section reduces to

$$\begin{aligned} \sigma(T_{21}) &\approx |\text{sinc}[T_{21}(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)]|^2 \\ &\times (1 + \cos(\phi)) \end{aligned} \quad (19)$$

. Which has maximum for $\phi = 0$ and minimum in $\phi = \pi$. For this last phase, light is present and the two photons are not absorbed by the molecule.

Hyper-entangled states are an important class of states in more the one degree of freedom [27]. Eq. (20) shows a general hyper-entangled state, entangled in polarization and position.

$$\begin{aligned} |\psi^{(2)}\rangle_{\text{hyper}} &= \{\cos(\varphi)|k_1 k_2\rangle + e^{i\phi_1} \sin(\varphi)|k_2 k_1\rangle\} \\ &\otimes \{\cos(\theta)|HV\rangle + e^{i\phi_2} \sin(\theta)|VH\rangle\}. \end{aligned} \quad (20)$$

Where H, V are horizontal and vertical photon polarization states. For the case of isotropic dipole matrix elements,

$$\begin{aligned}\langle Hk_1|d(t_i)|Hk_1\rangle &= \langle Hk_2|d(t_i)|Hk_2\rangle = \\ \langle Vk_1|d(t_i)|Vk_1\rangle &= \langle Vk_2|d(t_i)|Vk_2\rangle\end{aligned}\quad (21)$$

After summing the polarization related components, the cross section $\sigma(T_{21})$, for this case is

$$\begin{aligned}\sigma(T_{21}) \approx & \left| \sum_{j_1} d_{fj_1}^2 d_{j_1i}^1 \frac{1 - e^{i(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)T_{21}}}{(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)T_{21}} \right|^2 \\ & | \cos(\varphi) \cos(\theta) + \sin(\theta) \cos(\varphi) e^{i\phi_2} \\ & + e^{i\phi_1} \cos(\theta) \sin(\varphi) + \sin(\theta) \sin(\varphi) e^{i(\phi_1 + \phi_2)} |^2\end{aligned}\quad (22)$$

Considering $\theta = \varphi = \pi/4$ and $\phi_1 = \phi_2 = 0$, After summing in polarization states the cross section is the similar contribution of a spaced qudit with D=4: $4 |\text{sinc}[T_{21}(\varepsilon_{j_1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)]|^2$. Another very interesting case is the polarization entangled photons, in $T_{21} = 0$ and in a non-isotropic medium. The set of Eq.(21) obtains several values and we have different contributions for each state of polarization. An easy way to understand the influence of the entanglement type is to use polarization entangled photons on the limit $T_{21} \rightarrow 0$ where the cross section is $\sigma(T_{21}) \approx \left| \sum_{j_1} d_{fj_1(\vec{e}_{k1})}^2 d_{j_1i(\vec{e}_{k2})}^1 \right|^2$ and the dipole is a function of the polarization vector \vec{e}_{k1} . In a material with special configuration of the polarization vector, the cross section of the two photo absorption can be different: $\left| \sum_{j_1} (d_{fj_1(\vec{V}_{k1})}^2 d_{j_1i(\vec{V}_{k2})}^1 + d_{fj_1(\vec{H}_{k1})}^2 d_{j_1i(\vec{H}_{k2})}^1) \right|^2 \neq \left| \sum_{j_1} (d_{fj_1(\vec{H}_{k1})}^2 d_{j_1i(\vec{V}_{k2})}^1 + d_{fj_1(\vec{V}_{k1})}^2 d_{j_1i(\vec{H}_{k2})}^1) \right|^2$.

A experimental setup is proposed below for testing these ideas. A two photon generator with spatial entanglement using parametric down-conversion and slits is proposed. We generate a two photon state with the spontaneous parametric down-conversion effect. We illuminate a nonlinear crystal with a laser beam and we detected the light generated in specific positions. The entanglement is controlled with the use of the multiple slits and the transversal property of the pump. Different phases are inserted in order to vary the state. One part of signal is measured directly (reference signal) and the other part is measured after focusing on a sample.

Initially the counts with and without the sample can be equalized, then the subtraction

between both counts can be evaluated. Fig. 3 shows the experimental setup for the observation of the two photon state absorption for different slits and the scheme that shows the absorption levels for each type of qudit.

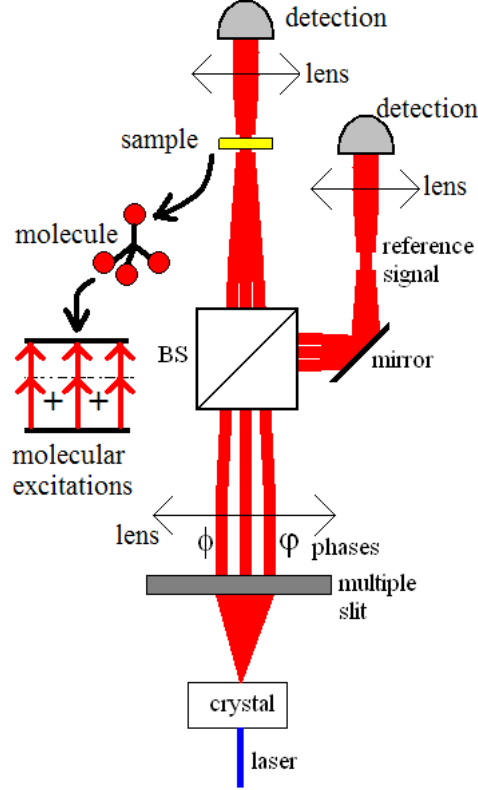


Figure 3: *Experimental setup with scheme showing the 2 photon absorption in the molecule for light in 2-photon qudit state.*

Fig. 4 shows the dependence between the maximum absorption of the 2-photon cross section and the dimension of the qudit state. Observing Eq.(10), the maximum is

$$3 \left| \text{sinc}[T_{21}(\varepsilon_{j1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)] \right|^2, \quad (23)$$

and in Eq.(19) the maximum is

$$2 \left| \text{sinc}[T_{21}(\varepsilon_{j1} - \varepsilon_i - \omega_1^0)] \right|^2. \quad (24)$$

The absorption cross is proportional the dimension of the qudit state. The increase of the state dimension increases the absorption response. After this results we can be lead to increase the number of pathways but this strategy can fail because if, for example, we

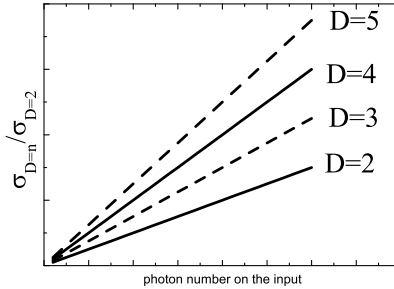


Figure 4: *Fraction between number of two-photon absorption cross section with qudit state (dimension $D = n$) and two-photon absorption cross section with qubit state (dimension $D = 2$) versus number of incident entangled pairs.*

mix two maximally entangled states $\frac{1}{\sqrt{2}}(|k_1k_1\rangle + |k_2k_2\rangle)$ and $\frac{1}{\sqrt{2}}(|k_1k_2\rangle + |k_2k_1\rangle)$ with same weight, we obtain a product state [28, 29], which is a state with low cross section for entangled photons. The phase ϕ (difference between pathway), Eq. (16), for the plane wave is similar to τ , but for the laser pulse, the contribution of the phase ϕ and τ in cross section are easier to separate and understand. In this case τ is the difference between the length of pathway of entangled photons and ϕ is the difference of phases between each pathway.

IV. CONCLUSION

The generalization for n -photon absorption is straightforward. The photonic qudit state superposition control can change the value of 2-photon absorption cross section. In the future this multiplex technique may be a tool for studying multi-photon transition of molecules in low intensity of light regime. Similarly to the classical pulse shaping technique that increases the product, because it provides more possibilities of pathway of a target product, here excited state, by increasing the dimension of the photonic state we increase the product, here the excited state, with increase of the number of pathways. This technique opens an avenue in manipulation of molecular and atomic states with few entangled photons. Despite of the big difference between the bunch of non entangled and entangled photons, for this case where the photon-ordering is specified, the processes are very similar because there is an interference between the pathways. For the case of bunching photons, the increase

of absorption cross section is caused by non ordering of the photons. It is different from this case where the increase depends on the phase and number of pathways caused by superposition of eigenstates in entangled variables. Some results can be strange at first . For the best comprehension of absorption, it is good to remember that quantum mechanics is an information theory and the information of different quantum states can have different responses [25, 26]. In this perspective the difference between non classical and classical absorption is easy to accept. In the History of Science, the increase of matter control is related to the use of more complex theories. Some of the first reactions in Chemistry were metallurgic reactions. In order to produce organic material, the scientific knowledge was increased in the same way as in our time, where we try to control few entities as in nanotechnology [30] and in quantum optics [31] where quantum mechanics shows more clearly its effects. And for this case, the control of quantum states can be more interesting than the control of classical fields. We believe that the control of photonic states can be a bigger advance than only the control of classical electromagnetic fields for low intensity of field.

-
- [1] R. B. Woodward, "Synthesis", in A. R. Todd, ed., *Perspectives in Organic Chemistry* (New York: Interscience, 1956), p.155.
- [2] C. Daniel, J. Full, L. Gonzalez, C. Lupulescu, J. Manz, A. Merli, S. Vajda, L. Woste *Science* **299** 536 (2003).
- [3] R. S. Judson and H. Rabitz, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1500 (1992).
- [4] M. Shapiro and P. Brumer, *Chem. Phys. Lett.* **126**, 541 (1986).
- [5] D. J. Tannor and S. A. Rice, *J. Chem. Phys.* **83**, 5013 (1985).
- [6] M. C. Stowe, A. Pe'er, and J. Ye, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 203001 (2008).
- [7] D. Zeidler, S. Frey, K. L. Kompa, and M. Motzkus, *Phys. Rev. A* **64**, 023420 (2001).
- [8] N. Khaneja, R. Brockett, and S. J. Glaser, *Phys. Rev. A* **63**, 032308 (2001).
- [9] J. L. Neves, B. Heitmann, T. O. Reiss, H. H. R. Schor, N. Khaneja, and S. J. Glaser *J. Magn. Reson.* **181** 126 (2006).
- [10] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, *Science* **282**, 919 (1998).

- [11] L. Mandel and E. Wolf, *Optical coherence and quantum optics*, Cambridge University Press (1995).
- [12] B. A. Reinhardt, *Photon. Sci. News* **4**, 21 (1999).
- [13] M. C. Teich and G. W. Wolga *Phys. Rev. Lett.* **16**, 625 (1966).
- [14] D. S. Ether, P. H. S. Ribeiro, C. H. Monken, and R. L. de Matos, *Phys. Rev. A* **73**, 053819 (2006).
- [15] J. Perina, B. E. A. Saleh, and M. C. Teich, *Phys. Rev. A* **57**, 3972 (1998).
- [16] J. Javanineh, and P. L. Gould *Phys. Rev. A* **41**, 5088 (1990).
- [17] F. Lissandrin, B.E.A. Saleh, A.V. Sergienko, and M. C. Teich *Phys. Rev. B* **69** 165317 (2004).
- [18] H. B. Fei, B. M. Jost, S. Popesco, B. E. A. Saleh, and M. C. Teich *Phys. Rev. Lett.* **78** 1679 (1997).
- [19] B. E. A. Saleh, B. M. Jost, H. B. Fei, and M. C. Teich *Phys. Rev. Lett.* **80** 3483 (1998).
- [20] J. Geabanacloche, *Phys. Rev. Lett.* **62** 1603 (1989).
- [21] N. P. Georgiades, E. S. Polzik, K. Edamatsu, H. J. Kimble, and A. S. Parkins, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3426 (1995).
- [22] L. Neves, G. Lima, J. G. Aguirre Gómez, C. H. Monken, C. Saavedra, and S. Pádua, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 100501 (2005).
- [23] G. Lima, F. A. Torres-Ruiz, L. Neves, A. Delgado, C. Saavedra, and S. Pádua *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **41** 185501 (2008).
- [24] C. H. Monken, P. H. S. Ribeiro, and S. Pádua *Phys. Rev. A* **57**, 3123 (1998).
- [25] S. P. Walborn , M. O. T. Cunha, S . Pádua, C. H. Monken *Phys. Rev. A* **65**, 033818 (2002).
- [26] M. O. Scully, B. G. Englert, and H. Walther *Nature* **351** 111 (1991).
- [27] J. T. Barreiro, N. K. Langford, N. A. Peters, and P. G. Kwiat, *Phys. Rev. Lett.* **95** 206501 (2005).
- [28] D. Cavalcanti, P. L. Saldanha, O. Cosme, F. G. S. L. Brando, C. H. Monken, S. Pádua, M. F. Santos, and M. O. T. Cunha, *Phys. Rev. A* **78** 012318 (2008).
- [29] M. Barbieri, F. De Martini, G. Di Nepi, and P. Mataloni, *Phys. Rev. Lett.* **92** 177901 (2004).
- [30] I. O. Maciel, N. Anderson, M. A. Pimenta, A. Hartschuh, H. H. Qian, M. Terrones, H. Terrones, J. Campos-Delgado, A. M. Rao, L. Novotny, and A. Jorio *Nature Materials* **7**, 878 (2008).
- [31] G. Lutterbach and L. Davidovich *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2547 (1997).