UNIVERSIDAD AUTÓNOMA METROPOLITANA

Unidad Iztapalapa División de Ciencias Básicas e Ingeniería DEPARTAMENTO DE FÍSICA



PROPAGACIÓN DE HACES BESSEL EN VAPORES ATÓMICOS Y EMISIÓN CÓNICA ANÓMALA

T E S I S que para obtener el título de **Maestría en Ciencias (Física)** P R E S E N T A **Fis. Áulide Martínez Tapia** Bajo la tutoría del **Dr. José Luis Hernández Pozos**

Ciudad de México, 13 de diciembre, 2019

MIEMBROS DE JURADO

Presidente Dr. José Ignacio Jiménez Mier y Terán Instituto de Ciencias Nucleares UNAM

Z Secretario
 Dr. José Luis Hernández Pozos
 Departamento de Física
 UAM-Iztapalapa

Vocal
 M. en C. José Luis Jiménez Ramírez
 Departamento de Física
 UAM-Iztapalapa

ACTA DE EXAMEN DE GRADO



UNIVERSIDAD AUTÓNOMA METROPOLITANA

No. 00081 Matrícula: 2163802919

Propagación de haces Bessel en vapores atómicos y En la Ciudad de México, se presentaron a las 11:00 horas emisión cónica anómala. del día 13 del mes de diciembre del año 2019 en la Unidad Iztapalapa de la Universidad Autónoma Metropolitana, los suscritos miembros del jurado: DR. JOSE IGNACIO JIMENEZ MIER Y TERAN MTRO. JOSE LUIS JIMENEZ RAMIREZ DR. JOSE LUIS HERNANDEZ POZOS Bajo la Presidencia del primero y con carácter de Secretario el último, se reunieron para proceder al Examen de Grado cuya denominación aparece al margen, para la obtención del grado de: MAESTRA EN CIENCIAS (FISICA) DE: AULIDE MARTINEZ TAPIA y de acuerdo con el artículo 78 fracción III del Reglamento de Estudios Superiores de la Universidad Autónoma Metropolitana, los miembros del jurado resolvieron: AULIDE MARTINEZ TAPIA ALUMNA Aprobar REVISÓ Acto continuo, el presidente del jurado comunicó a la interesada el resultado de la evaluación y, en caso aprobatorio, le fue tomada la protesta. MTRA ROSAUN SERRANO DE LA PAZ DIRECTORA DE SECOLARES DIRECTOR DE LA DIVISIÓN DE CBI PRESIDENTE DR JESUS ALBERTO OCHOA TAPIA DR. JOSE IGNACIO JIMENEZ MIER Y TERAN VOCAL SECRETARIO MTRO JOSELUIS JIMENEZ RAMIREZ DR. JOSE, JUIS HERNANDEZ POZOS

A mis padres

Socorro Hortencia Tapia Castro

y

José Manuel Martínez Magadán

Agradecimientos

Quiero agradecer a mi asesor, el Dr. José Luis Hernández Pozos por introducirme a la física experimental con un tema tan fascinante y por todos los consejos. Gracias a mis compañeros y amigos del grupo de Fotónica, Óptica No Lineal y Proceso Ultra Rápidos: el Fis. Luis Alberto Nava Rodríguez, el M. en C. Nahúm Méndez Alba, el Dr. Luis Guillermo Mendoza Luna y el Dr. César Guarín, por proporcionarme su ayuda, sus consejos, la experiencia y todo el conocimiento que compartieron conmigo. Todos contribuyeron al desarrollo y conclusión del trabajo. Gracias por ser mis amigos.

También quisiera agradecer a mis amigos de la carrera Ana Elisa, Carlos Adolfo, Carlos Ruiz, Juan Daniel, Roberto Resnick, Gili, Dani Amaro, Tania, Elda, Flavio, Edgar, Oscar y Brenda. Su apoyo y amistad significan mucho para mi.

No podría dejar de mencionar a los profesores que me enseñaron a hacer este trabajo, el Dr. Abel Camacho, el Dr. José Luis Jiménez Ramírez, el Dr. Gerardo Muñoz Hernández, el Dr. Miztli Yolotzin Yépez Martínez, el Dr. Hugo Aurelio Morales Técotl, la Dra. Tere de la Selva Moroy, el Dr. Eduardo Piña Garza, el Dr. Norberto Aquino Aquino y el Dr. Salvador Cruz Jiménez.

Gracias a mis familia, mis padres y hermanos

Por último, quiero dar gracias a Esther Sarai García González. Gracias por acompañarme estos años, al principio como desconocidas, hasta el día de hoy que lo compartimos todo.

Resumen

En este trabajo se presenta un estudio experimental de propagación de haces Bessel y haces Gaussianos en vapores atómicos bajo las condiciones a las cuales se produce el efecto de emisión cónica anómala (ECA).

En la primera parte del presente se exhiben las bases teóricas de la óptica no lineal en vapores atómicos con el fin de entender uno de los modelos más aceptados que intentan describir la emisión cónica. De la ecuación de onda no lineal, se obtienen las ecuaciones acopladas de uno de los fenómenos más sencillos de mezclado de ondas, la generación de suma de frecuencias. Este ejemplo permite definir la condición de acoplamiento de fase y después generalizar para obtener las ecuaciones acopladas generales de un proceso de mezclado de cuatro ondas. Después se obtienen las expresiones para la polarización no lineal y la susceptibilidad no lineal con el formalismo de la matriz de densidad para un sistema de dos niveles.

También se hace una revisión sobre las investigaciones teóricas y experimentales más significativas de la emisión cónica y se describen las características generales de la ECA. Por último, se incluye un resumen de la teoría de los haces ópticos utilizados en los experimentos, Gaussianos y Bessel. Se hace especial énfasis en las propiedades de los haces Bessel que son relevantes para este trabajo, así como en el método utilizado para la generación de haces Bessel a través de una lente cónica.

La segunda parte concierne al desarrollo del sistema experimental utilizado. Se produjo la ECA con haces Gaussianos y haces Bessel de orden cero, excitando la primera transición del calcio atómico $3p^64s^2 \ {}^1S_0 \rightarrow 3p^64s4p$ 1P_0 ($\lambda_{Ca} = 422.67nm$) con un láser de pigmento sintonizable, bombeado por el tercer armónico de un láser de Nd:YAG. Los haces Bessel fueron generados a partir de iluminar una lente axicón de 1° con el láser de pigmento. Después se analizan los resultados obtenidos a través de 9 imágenes y se comparan los ángulos de los anillos en función del tipo de haz que los produjo. Tras la serie de experimentos, se encontró, que dada una longitud de onda, el ángulo del anillo de la emisión cónica cambiaba dependiendo de que tipo de haz se utilizara para excitar el vapor atómico.

Índice general

1.	INTRODUCCIÓN			1
	1.1.	Estruc	tura de la tesis	3
2.	ÓPTICA NO LINEAL EN VAPORES ATÓMICOS			5
	2.1.	Óptica	ι no lineal	5
	2.2.	. Óptica no lineal en vapores		6
	2.3.	Ecuación de onda no lineal		
	2.4.	Ecuaciones de onda acopladas		
		2.4.1.	Ecuaciones de onda acopladas de la suma de frecuen-	
			cias	9
		2.4.2.	Condición de acoplamiento de fase	12
	2.5.	Mezcla	ado de cuatro ondas	13
	2.6. Sistemas		as atómicos de dos niveles	14
		2.6.1.	Matriz de densidad	15
		2.6.2.	Matriz de densidad para un sistema de dos niveles .	16
	2.7.	Efecto	Stark AC	24
3.	EMI	SIÓN C	CÓNICA ANÓMALA	27
	3.1.	Antecedentes de la emisión		27
	3.2.	Estudios sobre emisión cónica anómala		29
		3.2.1.	Modelos que involucran dispersión electrónica Ra-	
			man estimulada	29
		3.2.2.	Modelos que involucran modulación del índice de	
			refracción	29
		3.2.3.	Modelos que involucran efectos transitorios	30
		3.2.4.	Modelos que involucran radiación tipo Cherenkov .	30
		3.2.5.	Competencia de diversos efectos	30
		3.2.6.	Modelo de mezclado de cuatro ondas	31
	3.3.	Emisić	ón cónica anómala	31

4.	HACES ÓPTICOS 3						
	4.1. Propagación de la luz						
		4.1.1. Ecuación de onda paraxial	36				
	4.2.	Propiedades de los haces Gaussianos					
	4.3.	Haces Bessel	40				
		4.3.1. Propiedades de los haces Bessel	41				
		4.3.2. Generación de haces Bessel	43				
		4.3.3. Aplicaciones	48				
5.	DISI	DISEÑO EXPERIMENTAL 5					
	5.1.	Vapores atómicos					
		5.1.1. Vapor de sodio	52				
		5.1.2. Vapor de calcio	54				
	5.2.	Láser de bombeo	54				
	5.3.	Láser de pigmento sintonizable	55				
		5.3.1. Configuración tipo Littman-Metcalf	57				
		5.3.2. Láser de Rodamina	58				
		5.3.3. Láser de Stilbina	59				
	5.4.	Axicón y Haces Bessel	61				
	5.5.	Horno para vapores atómicos	63				
	5.6.	Detección	65				
6.	RESULTADOS EXPERIMENTALES						
	6.1.	Emisión cónica con haces Gaussianos	68				
	6.2.	Emisión cónica con haces Bessel	70				
	6.3.	Gaussianos vs. Bessel	72				
	6.4.	Emisión cónica en vapor de sodio	73				
7.	CON	ICLUSIONES	75				
A.	EMI	SIÓN CÓNICA ANÓMALA CON DOS TIPOS DE HACES	79				
	A.1.	Preparación de los vapores atómicos	80				
	A.2.	Vapor de sodio	80				
	A.3.	vapor de calcio	82				
B.	Densidad de vapor						
	B.1.	Densidad de vapor del calcio atómico	83				
C.	Foto	ografías de la ECA	85				
	C.1.	Emisión cónica anómala con haces Gaussianos	85				

C.2.	Emisió	n cónica anómala con haces Bessel	87
	C.2.1.	Axicón centrado	87
	C.2.2.	Axicón ligeramente fuera del eje	88

Capítulo 1

INTRODUCCIÓN

La propagación de haces en vapores atómicos para producir efectos ópticos no lineales se desarrolló a partir de la invención de las fuentes coherentes sintonizables en la región visible y ultravioleta (uv). Esto debido a que los efectos ópticos no lineales dependen de la magnitud de acoplamiento entre el haz y el medio no lineal, donde el acoplamiento usualmente se describe mediante la susceptibilidad no lineal.

Para obtener efectos no lineales con intensidades de campo medias, es necesario usar medios ópticos que tengan grandes susceptibilidades no lineales. El mecanismo físico de la susceptibilidad surge de cambios en la polarizabilidad promedio. Mucha de la investigación se dirigió a los medios gaseosos porque cumplen con cualidades para ser buenos medios no lineales —como una alta susceptibilidad no lineal de tercer orden, buena calidad óptica en un volumen pequeño, gran capacidad para soportar altas intensidades y buena transparencia a la radiación incidente y la generada— a diferencia de los cristales.

En átomos libres, como los de un gas, el vapor presenta dispersión anómala cuando la frecuencia del campo de excitación es cercana a una línea de resonancia y está en la región donde la derivada del índice de refracción respecto a la frecuencia es menor que cero ($dn/d\omega < 0$). Esto es, excitar en o cerca de resonancia produce un cambio en la polarizabilidad promedio y, por tanto, grandes valores de la susceptibilidad no lineal. Los primeros efectos estudiados desde esta perspectiva fueron los efectos de autoenfocamiento por Javan y Kelly¹ en 1966.

La emisión cónica anómala (ECA) es un efecto óptico no lineal coherente, el cual se produce bajo las condiciones de dispersión anómala, es decir, cuando un haz láser se propaga a través de un vapor atómico, sintonizado del lado de altas frecuencias de una de las transiciones atómicas del vapor.

El primer reporte de una estructura anular semejante a la emisión cónica fue realizado por D. Grischkowski² en 1970 mientras estudiaba el autoenfo-

camiento en vapor atómico de potasio. Pero fue hasta 1980 que C. H. Skinner y P. D. Kleiber³ realizaron el primer estudio sistemático. Desde entonces, se han realizado numerosos estudios de esta emisión utilizando láseres cw y pulsados en diversos vapores alcalinos y alcalinotérreos. Sin embargo, ninguno ha podido explicar por completo la emisión.

La mayoría de los trabajos experimentales sobre ECA —sobre todo los citados en este trabajo— encuentran las siguientes características de la emisión: el espectro del cono no depende de la potencia del láser de bombeo; el ángulo del cono es proporcional a la raíz cuadrada de la densidad en inversamente proporcional a la raíz cuadrada de la desintonía, y que el espectro del cono siempre se encuentra ensanchado y desplazado simétricamente a la desintonía respecto de la transición atómica.

Los modelos teóricos que intentan explicar la emisión proponen fenómenos como la amplificación de bandas de Rabi acompañado de una modulación en el índice de refracción,^{4–6} la dispersión electrónica Raman estimulada,^{7,8} el efecto Cherenkov,^{9,10} los efectos transitorios^{11–13} y el mezclado de ondas.^{3–5} También se ha propuesto que la emisión podría ser producida por una combinación de diversos efectos no lineales.^{7,14} No obstante, ninguno de estos modelos ha logrado explicar todas las características de la emisión.

De los modelos que han intentado explicar la emisión cónica, el que involucra un mezclado de cuatro ondas (FWM por sus siglas en inglés Four-wave mixing) ha sido ampliamente estudiado y es de los más aceptados. De hecho, Skinner y Kleiber³ fueron los primeros en proponer que el origen de la emisión podría ser debido a este proceso. La estructura espacial de la emisión siguiere un acoplamiento de fase, producida por un mezclado de cuatro ondas

$$\Delta k = k_L + k_2 + k_3 + k_C. \tag{1.1}$$

donde k_L y k_C son los vectores de onda de láser de excitación y del cono, respectivamente. No obstante, no se encontraron las frecuencias restantes que complementaban el mezclado de ondas.

El mezclado de ondas es un proceso paramétrico¹⁵ que es sensible a la fase,^{16,17} así que la eficiencia del proceso se ve fuertemente afectada por las condiciones de acoplamiento de fase. Por lo tanto, para un mezclado de ondas es posible modificar el acoplamiento de fase y observar los cambios en el comportamiento del fenómeno.

Esta idea surge de recordar el caso más simple de mezclado de ondas, la generación de segundo armónico (SHG por sus siglas en inglés Secondharmonic generation) —del cuál se conoce su solución exacta (véase capítulo 2 del libro de R. Boyd¹⁶).— Se sabe que el acoplamiento de fase del SHG puede variar con la longitud efectiva de camino óptico a través del cristal; es decir, modificando el ángulo de incidencia, o con la temperatura. Por tanto, una alternativa para demostrar que la emisión cónica es producida por un mezclado de ondas es estudiar la dependencia de la emisión cónica con la fase modificando la condición de acoplamiento de fase de forma controlada, como se hace para la generación del segundo armónico.

En este trabajo se realiza un estudio experimental de emisión cónica en dos vapores atómicos (sodio y calcio) con dos tipos de haces, Gaussianos y Bessel de orden cero. Esto con el objetivo de comparar el ángulo del cono que forma la emisión para los dos distintos haces cuando ambos se encuentran a la misma longitud de onda. Si los ángulos fueran distintos, entonces, podemos suponer que la emisión cónica es un fenómeno sensible a la fase y conjeturar que se produce a partir de un proceso de mezclado de ondas.

Los haces Bessel de orden cero son los haces cuyo perfil transversal de intensidad está descrito por una función Bessel de primera especie y orden cero. En 1987, Durnin¹⁸ descubrió que estos haces era una solución singular de la ecuación de onda escalar con propiedades de considerable interés y también los generó experimentalmente.

Wulle y Herminghaus¹⁹ fueron los primeros en utilizar haces Bessel para modificar el acoplamiento de fase en óptica no lineal. Es importante mencionar que en el caso de la emisión cónica, todos los estudios siempre han sido con haces Gaussianos.

La propiedad de los haces Bessel que podría modificar la condición sobre el acoplamiento de fase es su vector de onda

$$|\boldsymbol{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}\cos\theta \tag{1.2}$$

donde, θ (véase Fig. 4.5) es una variable que puede manipularse al momento de generar los haces Bessel. Esta variable depende del método utilizado para generar los haces Bessel, como veremos en capítulo 5.

1.1. Estructura de la tesis

La primera parte de esta tesis contiene los fundamentos teóricos de la óptica no lineal que se utilizan para describir la emisión cónica y un resumen de los antecedentes de las investigaciones previas.

En la segunda parte se presentan los resultados de los experimentos que se realizaron con los dos tipos de haces, Gaussianos y Bessel de orden cero. El propósito de estos experimentos principalmente es ayudar a saber si la emisión cónica es producida por un mezclado de ondas.

En el capítulo 1 se introduce el objetivo del trabajo e introduce el tema a estudiar de forma breve y mencionando los aspectos más importantes.

En el capítulo 2 se presentan las bases teóricas de la óptica no lineal en vapores atómicos utilizando la formulación de la matriz de densidad. Se considera que el vapor es un ensamble de sistemas de dos niveles y se encuentra la ecuación de la polarización no lineal de éste. Luego se considera el mezclado de cuatro ondas y se estudian las ecuaciones de onda con la polarización no lineal actuando como término de fuente para la generación de la emisión. En la ultima sección se estudia el efecto Stark ac ya que se ha reportado que es el responsable de intensificar la amplificación paramétrica de cuatro ondas

El capítulo 3 se presenta una revisión de los trabajos teóricos y experimentales que han sido publicados hasta la fecha sobre la emisión cónica y se resumen las características generales de la emisión.

En el capítulo 4 se describen las propiedades físicas y de propagación de los haces Gaussianos y Bessel. Esto permite entender las diferencias entre los dos tipos de haces.

El capítulo 5 es la descripción del equipo experimental, su implementación y diseño.

En el capítulo 6 se presentan los resultados experimentales de estudiar el fenómeno no lineal de emisión con haces Gaussianos y haces Bessel.

Capítulo 2

ÓPTICA NO LINEAL EN VAPORES ATÓMICOS

2.1. Óptica no lineal

La óptica no lineal¹⁶ se dedica al estudio de los efectos en la materia (medio) y en los campos electromagnéticos (radiación) cuando éstos interactúan entre sí. Cuando ambas partes, radiación y medio, sufren cambios por su mutua interacción, se genera un proceso iterativo: el campo actúa sobre el medio y lo modifica, luego, éste actúa significativamente sobre el campo, lo cual cambia su efecto sobre el medio y así sucesivamente.

Los efectos ópticos no lineales fueron observados por primera vez en 1961 cuando Franken *et al.*²⁰ descubrieron la generación del segundo armónico, tan solo un año después de la construcción del primer láser. Fue este invento el que permitió demostrar que el flujo intenso de luz podía producir efectos no lineales en varios medios. La no linealidad de la interacción entre radiación y medio se ve reflejada en la respuesta del material a un campo óptico aplicado. Esta respuesta usualmente se representa escribiendo la polarización, P(r, t), como una serie de potencias del campo eléctrico aplicado E(r, t),

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \epsilon_0 \left[\chi^{(1)} \mathbf{E} + \chi^{(2)} \mathbf{E}^2 + \chi^{(3)} \mathbf{E}^3 + \dots \right], \qquad (2.1)$$

donde $\chi^{(1)}, \chi^{(2)}, \chi^{(3)}$ son las susceptibilidades eléctricas de primer, segundo y tercer orden, respectivamente.

Las grandes intensidades de campo producidas por los láseres mostraron que los efectos causados por las susceptibilidades de segundo y tercer orden pueden ser significativos. Usualmente, los efectos producidos por el campo magnético no son considerados porque son varios ordenes de magnitud menores en comparación con los efectos generados por el campo eléctrico. Por ejemplo, en el caso de una onda plana, el campo magnético es directamente proporcional al campo eléctrico e inversamente proporcional a la velocidad de la luz en el vacío

$$\boldsymbol{B} \propto \frac{1}{c} \boldsymbol{E},$$
 (2.2)

lo cuál demuestra que la intensidad del campo magnético es mucho menor que la del campo eléctrico. Por esta razón no se consideran los efectos del campo magnético en la mayoría de los efectos no lineales.

Además de la generación de segundo armónico existen otros efectos no lineales, los cuales pueden clasificarse como procesos paramétricos y no paramétricos segun D.C. Hanna *et al.*¹⁵ Los procesos paramétricos se caracterizan porque el estado cuántico inicial y final del sistema son el mismo y necesitan un acoplamiento de fase¹ para ser eficientes, ya que la energía del proceso se conserva. Algunos ejemplos de procesos paramétricos son la generación de segundo armónico o armónicos de orden superior, suma y diferencia de frecuencias, entre otros.

Los procesos no paramétricos, por otro lado, se caracterizan porque el estado final de los átomos es diferente del estado inicial y no necesitan de acoplamiento de fase, porque la energía puede transferirse desde o hacia el medio. Los procesos de dos fotones (absorción y emisión) y la dispersión Raman estimulada son importantes ejemplos de procesos no paramétricos. D. C. Hanna *et al.*¹⁵ explican que esta clasificación es puramente cualitativa, ya que hay procesos que no pueden ser categorizados totalmente como paramétricos.

2.2. Óptica no lineal en vapores

Como se había mencionado, las fuentes coherentes sintonizables (incluyendo el láser de pigmento) son un desarrollo de suma importancia en la óptica no lineal. Estas fuentes permiten excitar las transiciones atómicas en resonancia —o a frecuencias cercanas a la resonancia— y, con ello, observar una gran variedad de procesos ópticos no lineales en medios.

Se comenzaron a utilizar medios gaseosos o diluidos por su alta susceptibilidad no lineal, buena calidad óptica en un volumen pequeño, gran capacidad para soportar altas intensidades y buena transparencia a la radiación incidente y la generada. Algunas de las ventajas que presentan los medios gaseosos son su facilidad de preparación, la calidad óptica en grandes

¹En la sección 2.3.2 se explica con más detalle el término acoplamiento de fase

volúmenes de gas, la gran resistencia a altas intensidades, y la buena transparencia en ultravioleta (uv) e infrarrojo (ir).

Otra característica importante de los medios gaseosos es que la susceptibilidad de segundo orden, $\chi^{(2)}$, es cero, $^{15,\,16}$ ya que presentan simetría de inversión. Por ese motivo, en este tipo de medios los efectos no lineales son producidos por la susceptibilidad de tercer orden $\chi^{(3)}$.

En general, la $\chi^{(3)}$ es varios ordenes de magnitud menor que la susceptibilidad de segundo orden, a excepción de que se bombeé en o cerca de resonancia (a desintonías pequeñas).

Tomando en cuenta todo lo anterior, al excitar cerca de resonancia un sistema de átomos libres con un campo óptico se produce un cambio en la polarizabilidad promedio caracterizada por grandes valores de la susceptibilidad de tercer orden. Además, es posible considerar que los átomos o moléculas que constituyen el vapor no interactúan entre sí, lo cual permite hacer la aproximación del gas ideal para el sistema.

Juntando la ausencia de interacción entre los elementos que constituyen al vapor y la capacidad de sintonizar la radiación a frecuencias cercanas a transiciones atómicas —volviendo significativos los efectos de las susceptibilidades lineal y no lineal— se puede suponer a los átomos como sistemas de dos niveles de energía y así utilizar el formalismo de la matriz de densidad en mecánica cuántica para estudiar al sistema como lo hacen R. Boyd,¹⁶ A. Yariv,²¹ entre otros autores.

2.3. Ecuación de onda no lineal

La interacción clásica entre un medio material sin cargas ni corrientes libres y la radiación electromagnética puede describirse a partir de las ecuaciones de Maxwell^{16,22}

$$\nabla \cdot \boldsymbol{D} = 0, \tag{2.3}$$

$$\nabla \cdot \boldsymbol{B} = 0, \tag{2.4}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{E} = -\frac{\partial \boldsymbol{B}}{\partial t},\tag{2.5}$$

$$\nabla \times \boldsymbol{H} = \frac{\partial \boldsymbol{D}}{\partial t}$$
(2.6)

y las relaciones constitutivas

$$\boldsymbol{D} = \epsilon_0 \boldsymbol{E} + \boldsymbol{P},\tag{2.7}$$

$$\boldsymbol{B} = \mu_0 (\boldsymbol{H} + \boldsymbol{M}). \tag{2.8}$$

Como el medio es no lineal, la polarización puede escribirse como una serie de potencias del campo eléctrico^{16,23} como en la ecuación (2.1), y puede separarse en parte lineal y parte no lineal

$$\boldsymbol{P}(\boldsymbol{r},t) = \epsilon_0 \left[\chi^{(1)} \boldsymbol{E} + \chi^{(1)} \boldsymbol{E}^2 + \chi^{(3)} \boldsymbol{E}^3 + \dots \right],$$
$$\boldsymbol{P} = \boldsymbol{P}_L + \boldsymbol{P}_{NL}.$$
(2.9)

El procedimiento usual para obtener la ecuación de onda a partir de las ecuaciones de Maxwell¹⁶ es aplicar el rotacional a la ecuación (2.5) y sustituir el resto de las ecuaciones de Maxwell y las relaciones constitutivas, lo que nos lleva a

$$\nabla \times \nabla \times \boldsymbol{E} + \mu_0 \frac{\partial^2 \boldsymbol{D}}{\partial t^2} = 0.$$
 (2.10)

Esta es la forma más general de la ecuación de onda en óptica no lineal. Ésta puede simplificarse utilizando la identidad vectorial $\nabla \times \nabla \times E = \nabla (\nabla \cdot E) - \nabla^2 E$. En general, el primer término del lado derecho de la identidad vectorial no es cero debido a la relación constitutiva (2.7), incluso para medios isotrópicos. Una forma de despreciar este término es suponiendo que el campo eléctrico varía lentamente para las escalas atómicas, esto es, utilizar la aproximación de que la amplitud que varía suavemente. Además, utilizando la relación constitutiva (2.5), se obtiene

$$\nabla^2 \boldsymbol{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \boldsymbol{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \boldsymbol{P}}{\partial t^2}.$$
 (2.11)

Introduciendo (2.7) en (2.9), tal que la polarización lineal la escribimos como $P_L = \epsilon_0 \chi^{(1)} E$, y considerando que $\epsilon = 1 + \chi^{(1)}$ no depende del tiempo, la ecuación de onda no lineal resulta

$$\nabla^2 \boldsymbol{E} - \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 \boldsymbol{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \boldsymbol{P_{NL}}}{\partial t^2}.$$
 (2.12)

Esta ecuación es la ecuación de onda inhomogénea. Nótese que la respuesta no lineal del medio actúa como un término fuente, el término del lado derecho de la igualdad. En la región óptica del espectro electromagnético, los campos oscilan rápidamente, por lo que normalmente se escribe explícitamente la dependencia temporal de los campos como

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})A(t)e^{-i\omega t}, \qquad (2.13)$$

donde ω es la frecuencia angular y A(t) es una función que varía lentamente en comparación con la exponencial, y representa la longitud del pulso y la coherencia parcial.

2.4. Ecuaciones de onda acopladas

La ecuación de onda (2.12) que se dedujo en la sección anterior se utiliza para describir las interacciones ópticas no lineales. Esta ecuación debe cumplirse para cada componente de frecuencia del campo aplicado, componentes que interactúan entre ellas en el medio. El acoplamiento entre las ondas es consecuencia de la susceptibilidad, $\chi^{(n)}(\omega)$, y está representado por las ecuaciones de onda acopladas.

2.4.1. Ecuaciones de onda acopladas de la suma de frecuencias

Las interacciones más sencillas que se pueden describir con la ecuación de onda son la generación de segundo armónico (SHG) y la suma y diferencia



Figura 2.1: Representación esquemática de la (a)generación de segundo armónico, (b) la suma de frecuencias y (c) la generación de tercer armónico y sus diagramas de niveles de energía. Imagen adaptada del libro de R. Boyd¹⁶

de frecuencias (SFG y DFG por sus siglas en inglés Sum-frequency generation y Difference-frequency generation), los osciladores y amplificadores paramétricos. Todas éstas están descritas por tres ecuaciones de onda acopladas. En la figura 2.1a y 2.1b se ilustran la generación de segundo armónico y la suma de frecuencias, como normalmente se presentan en los libros de óptica no lineal.¹⁶ El lado izquierdo de ambos muestra esquemáticamente los procesos y el lado derecho tiene los diagramas de niveles de energía virtuales (como son llamados normalmente) que los describen. Por ejemplo, para la generación de segundo armónico solo se necesita de un campo incidente, el cual produce dos campos, uno con la misma frecuencia que el incidente y otro con el doble de la frecuencia, llamado segundo armónico.

Otro ejemplo, más ilustrativo, es la suma de frecuencias, en el cual dos campos $E_1(\omega_1)$ y $E_2(\omega_2)$, de frecuencias ω_1 y ω_2 , interactúan simultáneamente con el medio, produciendo un tercer campo, $E_3(\omega_3)$ con una frecuencia igual a la suma de las frecuencias de los campos incidentes, $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$.

Como se había mencionado, la ecuación de onda debe cumplirse para cada componente de frecuencia. En particular, considerando la suma de frecuencias en un medio óptico no lineal que no produce perdidas y suponiendo que los haces de entrada son monocromáticos, colimados, continuos y que llegan al medio no lineal con incidencia normal, propagándose a lo largo del eje z, como lo hace Boyd,¹⁶ la componente de la suma de frecuencias es

$$E_{3}(z,t) = A_{3}(z)e^{i(k_{3}z-\omega_{3}t)} + c.c,$$

$$k_{3} = \frac{n_{3}\omega_{3}}{c},$$

$$n_{3} = [\epsilon^{(1)}(\omega_{3})]^{1/2},$$
(2.14)

donde $A_3(z)$ es una amplitud que varía suavemente en z y c.c. representa al complejo conjugado. Este es el *ansatz* que normalmente se propone como solución de la ecuación de onda cuando existe el término no lineal de la polarización.

Representando la polarización no lineal como lo hace Boyd¹⁶

$$P_{3}(z,t) = P_{3}e^{-i\omega_{3}t} + c.c.,$$

$$P_{3} = 4de_{eff}E_{1}E_{2},$$
(2.15)

tal que d_{eff} se define como el valor efectivo de la susceptibilidad. Poniendo la polarización en términos de las amplitudes del campo, queda como

$$P_3 = 4d_{eff}A_1A_2e^{i(k_1+k_2)z}.$$
(2.16)

Sustituyendo el campo y la polarización no lineal para la componente de frecuencia ω_3 en la ecuación de onda no lineal se obtiene y considerando que los campos solo dependen de la coordenada z, la ecuación de onda resulta

$$\begin{bmatrix} \frac{d^2 A_3}{dz^2} + 2ik_3 \frac{dA_3}{dz} - k_3^2 A_3 + \frac{\epsilon^{(1)}(\omega_3)\omega_3^2 A_3}{c^2} \end{bmatrix} e^{i(k_3 z - \omega_3 t)} + c.c. = = \frac{-16\pi d_{eff}\omega_3^2}{c^2} A_1 A_2 e^{i[(k_1 + k_2)z - \omega_3 t]} + c.c.$$
(2.17)

Debido a que los campos dependen solo de la coordenada z, se puede sustituir el Laplaciano por la segunda derivada respecto de z. Aún es posible simplificar más la ecuación utilizando las relaciones de la magnitud del vector de onda y la permitividad de (2.12) y quitar el complejo conjugado de ambos lados no altera la igualdad

$$\frac{d^2A_3}{dz^2} + 2ik_3\frac{dA_3}{dz} = \frac{-16\pi d_{eff}\omega_3^2}{c^2}A_1A_2e^{i(k_1+k_2)z}.$$
(2.18)

Además, utilizando la aproximación de la amplitud que varía suavemente, se puede despreciar el término de segunda derivada, ya que es mucho menor comparado con el término de primera derivada

$$\left|\frac{d^2 A_3}{dz^2}\right| \ll \left|k_3 \frac{dA_3}{dz}\right|. \tag{2.19}$$

Al realizar esta aproximación, (2.18) se reescribe como

$$\frac{dA_3}{dz} = \frac{8i\pi d_{eff}\omega_3^2}{k_3c^2} A_1 A_2 e^{i\Delta kz},$$
(2.20)

El término

$$\Delta k = k_1 + k_2 - k_3 \tag{2.21}$$

es un parámetro, llamado acoplamiento de fase. La ecuación (2.20) es llamada la ecuación de las amplitudes acopladas y describe como varía la amplitud de la onda de ω_3 como consecuencia de su acoplamiento con las ondas de frecuencias ω_1 y ω_2 .

Análogo al procedimiento anterior, se pueden encontrar las ecuaciones acopladas de las otras dos componentes de frecuencias, las cuales resultan ser

$$\frac{dA_1}{dz} = \frac{8i\pi d_{eff}\omega_1^2}{k_1c^2} A_3 A_2^* e^{-i\Delta kz},$$

$$\frac{dA_2}{dz} = \frac{8i\pi d_{eff}\omega_2^2}{k_2c^2} A_3 A_1^* e^{-i\Delta kz},$$
(2.22)

Una vez que ya se tiene el sistema de ecuaciones acopladas del proceso, lo que resta es resolver. Para este caso de suma de frecuencias, las ecuaciones tiene solución exacta en términos de las funciones elípticas de Jacobi. No se presentarán los detalles de la solución porque sale del objetivo de este trabajo. Los detalles los desarrollaron Armstrong *et. al.*²⁴ y Boyd¹⁶ presenta un tratamiento más sencillo e ilustrativo.

2.4.2. Condición de acoplamiento de fase

Los procesos no lineales sensibles a la fase —como los mencionados la sección anterior— requieren un acoplamiento de fase para ser eficientes.^{16,23} La eficiencia de un proceso óptico no lineal está determinado por la susceptibilidad no lineal del medio y el parámetro de acoplamiento de fase, Δk , el cuál representa el desfase espacial del vector de onda resultante.

Para lograr una eficiencia de conversión de energía óptima, debe cumplirse que

$$\Delta k = 0. \tag{2.23}$$

Esta condición se conoce como acoplamiento de fase perfecto. Cuando ésta se satisface, la onda generada mantiene una relación de fase constante con la polarización no lineal y se extrae energía de las ondas incidentes de la forma más eficiente. Esencialmente, esto significa que la relación de fase entre las ondas que interactúan en el medio no lineal se mantiene a lo largo de la dirección de propagación. Para que la eficiencia sea máxima, el acoplamiento de fase, Δk , debe ser cero (véase ecs. 2.20 a 2.23).

El acoplamiento de fase se formula como una relación lineal entre los vectores de onda de las diversas componentes de frecuencia involucradas en el proceso cuando se obtienen las ecuaciones de onda acopladas. También puede verse como conservación de momento. A continuación se presentan los acoplamientos de fase que corresponderían a los procesos no lineales descritos en la Fig. 2.1, la generación de segundo armónico (SHG), la generación de tercer armónico (THG) y suma de frecuencias (SFH), que el desarrollo explícito donde se muestra a partir de que se define el acoplamiento de fase

$$\Delta k = 2k_1 - k_2 = 0 \quad (SHG),$$

$$\Delta k = 3k_1 - k_3 = 0 \quad (THG),$$

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 = 0 \quad (SFG).$$
(2.24)

Generalmente, la dispersión causa un desacoplamiento de fase distinto de cero y se buscan técnicas para reducirlo lo más posible.

2.5. Mezclado de cuatro ondas

El mezclado de cuatro ondas²³ (FWM) es un proceso no lineal paramétrico, en el cuál, la interacción entre dos o tres campos $-E_1(\omega_1)$, $E_2(\omega_2)$ y $E_3(\omega_3)$ o $E_1(\omega_1)$ y $E_2(\omega_2)$ - produce dos o una longitud de onda nueva $-E_4(\omega_3)$ o $E_3(\omega_3)$ y $E_4(\omega_4)$.-

La susceptibilidad no lineal de tercer orden $\chi^{(3)}$ es la responsable del proceso de FWM ya que induce la polarización en el medio. Al encontrar la expresión para la susceptibilidad no lineal de tercer orden y la polarización en términos de los campos, y sustituirlas en la ecuación de onda no lineal, se encuentra un conjunto de cuatro ecuaciones de onda no lineales acopladas —una por cada componente de frecuencia— como se hizo para el caso de suma de frecuencias.

De acuerdo con C. W. Thiel,¹⁷ las ecuaciones para las magnitudes de los campos $E_1(\omega_1)$, $E_2(\omega_2)$ y $E_3(\omega_3)$, que interactúan en el medio no lineal para producir una cuarta, $E_4(\omega_4)$, en la aproximación de la envolvente que varía lentamente — esto es, bajo las mismas condiciones en las que se obtuvieron las ecuaciones acopladas de la suma de frecuencias en la sección 2.2.1— son:

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_1}{\partial z} + \frac{1}{v_1} \frac{\partial E_1}{\partial t} &= 2\pi i \frac{\omega_1}{n_1 c} \left[\chi_{1234}^{NL} E_2 E_3^* E_4 e^{-i\Delta kz} + \sum_{j=1}^4 \chi_{1j}^{NL} E_1 E_j E_j^* \right], \\ \frac{\partial E_2}{\partial z} &+ \frac{1}{v_2} \frac{\partial E_2}{\partial t} = 2\pi i \frac{\omega_1}{n_2 c} \left[\chi_{1234}^{NL} E_1 E_3 E_4^* e^{-i\Delta kz} + \sum_{j=1}^4 \chi_{2j}^{NL} E_2 E_j E_j^* \right], \\ \frac{\partial E_3}{\partial z} &+ \frac{1}{v_3} \frac{\partial E_3}{\partial t} = 2\pi i \frac{\omega_1}{n_3 c} \left[\chi_{1234}^{NL} E_1^* E_2 E_4 e^{-i\Delta kz} + \sum_{j=1}^4 \chi_{3j}^{NL} E_3 E_j E_j^* \right], \\ \frac{\partial E_4}{\partial z} &+ \frac{1}{v_4} \frac{\partial E_4}{\partial t} = 2\pi i \frac{\omega_1}{n_4 c} \left[\chi_{1234}^{NL} E_1^* E_2 E_4 e^{-i\Delta kz} + \sum_{j=1}^4 \chi_{4j}^{NL} E_4 E_j E_j^* \right], \end{aligned}$$
(2.25)

tal que el desacoplamiento de fase es

$$\Delta k = k_1 + k_2 + k_3 - k_4. \tag{2.26}$$

Para resolver estas ecuaciones, normalmente se suponen soluciones de onda plana y que la energía transferida desde los campos de entrada a los nuevos campos es una fracción insignificante. Con esto se desacoplan las ecuaciones en (2.25) y se puede resolver para los cuatro campos.

El acoplamiento eficiente entre las cuatro ondas solo es posible cuando el momento y la energía se conservan simultáneamente, esto es

$$\omega_4 = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$$

$$\mathbf{k_4} = \mathbf{k_1} - \mathbf{k_2} + \mathbf{k_3}$$
(2.27)

Otra forma de entender estas condiciones es darse cuenta de que, dado que la transferencia de energía es un proceso coherente, las cuatro ondas deben mantener una relación de fase constante respecto a las otras para evitar cualquier interferencia destructiva.

Los procesos más comunes de mezclado de cuatro ondas son: suma y diferencia de frecuencias, generación de tercer armónico (THG), espectroscopía Raman anti-stokes coherente (CARS), espectroscopía Raman coherente (CSRS), espectroscopía Raman estimulada (SRS), espectroscopía de efecto Raman inverso (TERS).

Algunos de los modelos que intentan explicar la emisión cónica proponen que el mezclado de cuatro ondas es responsable, otros que el mezclad de cuatro ondas se suma con otros procesos no lineales^{7,14} teniendo como resultado el anillo de la emisión. Como el mezclado de ondas en un proceso sensible a la fase, al cambiar la condición de acoplamiento de fase (2.26) nos dirá si la emisión es sensible a la fase. La forma en que se propone cambiar la condición de acoplamiento de fase en este trabajo es utilizando un haz con un vector de onda distinto al de haces Gaussianos.

Para asegurar que la emisión cónica es un proceso de FWM se tendrían que encontrar tanto experimental como teóricamente las demás ondas, además de que el ángulo del anillo cambiara con al cambiar el vector de onda.

2.6. Sistemas atómicos de dos niveles

Cuando se excita cerca de resonancia una sola de las transiciones atómicas del medio óptico no lineal, conviene estudiar la respuesta del medio considerando únicamente los dos niveles de energía involucrados (como se representa en la fig. 2.2) en la interacción. Este tipo de sistemas se estudia con el formalismo de la matriz de densidad. Usualmente y para propósitos de este trabajo, se utiliza el tratamiento semiclásico, esto es, se considera al campo electromagnético como un campo clásico y la descripción del átomo se realiza a partir de la mecánica cuántica.^{6, 16, 21} Además, se aprovecha el formalismo de la matriz de densidad para obtener la polarización y la susceptibilidad no lineal del sistema de dos niveles.

2.6.1. Matriz de densidad

Se usa el formalismo de la matriz de densidad en sistemas donde no se conoce la suficiente información para determinar unívocamente el estado del sistema cuántico, es decir, cuando no es posible determinar exactamente la función de onda sistema. Para introducir el concepto de matriz de densidad se considera un sistema cuántico en el estado $\phi(\mathbf{r}, t)$,²¹ donde

$$\phi(\mathbf{r},t) = \sum c_s(t) u_s(\mathbf{r}),$$

tal que $u_s(\mathbf{r})$ es un conjunto completo de funciones ortonormales arbitrarias. La falta de información del sistema está reflejada en el hecho de que hay una probabilidad c_1 de que el sistema se encuentre en el estado $|u_1\rangle^{\text{II}}$, una probabilidad c_2 de que se encuentre en el estado $|u_2\rangle$,²⁵ etcétera, donde

$$\sum_{s} c_{s} = c_{1} + c_{2} + \dots + c_{n} = 1.$$

Se dice que $\phi(\mathbf{r}, t)$ es una mezcla estadística de los estados $|u_1\rangle$, $|u_2\rangle$, $|u_2\rangle$..., con probabilidades c_1, c_2, c_3 , etc. A la mezcla estadística de dos o más estados diferentes se le llama estado mezclado^{21,25–27} y el estado puro^{21,25–27} es aquel en el que todas las probabilidades c_s son cero, excepto una y por tanto, el estado del sistema se conoce perfectamente.

Ahora, sea \hat{A} un operador el cual corresponde a alguna observable del sistema. El valor promedio esperado de \hat{A} esta dado por

$$\overline{\langle \hat{A} \rangle} = \sum_{nm} A_{nm} \overline{c_n^* c_m}.$$
(2.28)

Aquí, conviene definir

$$\rho_{nm} = \overline{c_n^* c_m},\tag{2.29}$$

donde la barra denota el promedio sobre un ensamble, esto es

¹¹Se utiliza la notación de brackets de Dirac por simplicidad



Figura 2.2: Representación gráfica de un sistema de dos niveles separados por una diferencia de energía $\Delta E=\hbar\omega_{ab}$

$$\rho_{nm}(t) = \frac{1}{N} \sum_{s=1}^{N} c_n^{(s)}(t) c_m^{*(s)}(t).$$
(2.30)

Rescribiendo el valor promedio esperado

$$\frac{\langle \hat{A} \rangle}{\langle \hat{A} \rangle} = \sum_{nm} (\rho A)_{nm},$$

$$\overline{\langle \hat{A} \rangle} = Tr(\rho A)$$
(2.31)

La matriz formada por los valores de ρ_{nm} se conoce como la matriz de densidad.

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix}$$
(2.32)

De (2.30) podemos decir que si conocemos la matriz de densidad, podemos calcular el valor promedio de cualquier cantidad que caracterice al sistema, es decir, de cualquier observable.

De lo anterior, se encuentra que la evolución temporal de la matriz de densidad es²⁶

$$\dot{\rho}_{nm} = \frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}] = \frac{i}{\hbar} \sum_{v} (H_{nv} \rho_{vm} - \rho_{nv} H_{vm}).$$
(2.33)

La descripción a través de la matriz de densidad es la forma más general representar un sistema en mecánica cuántica.

2.6.2. Matriz de densidad para un sistema de dos niveles

El sistema estudiado en este trabajo es un conjunto de átomos que pueden ser considerados de dos niveles, gracias a que el campo de excitación estará cerca de resonancia. Este conjunto de átomos de dos niveles puede ser estudiado a partir del formalismo de la matriz de densidad como un ensamble de sistemas de dos niveles, a partir del cual se pueden obtener la polarización y la susceptibilidad promedio utilizando (2.31).

Para obtener la polarización y la susceptibilidad no lineal con el formalismo de la matriz de densidad^{6, 16, 21} se deben considerar las soluciones estacionarias del sistema átomo-campo. La aproximación de estados estacionarios es válida cuando la duración de la interacción es menor que el tiempo de relajación del sistema atómico.

Además, se considera que los átomos del ensamble de los sistemas de dos niveles son indistinguibles. Por consiguiente, los átomos del ensamble sólo tendrán dos niveles de energía —un estado base $|a\rangle$ y un estado excitado $|b\rangle$ (véase Fig. 2.2).

Un átomo de dos niveles está descrito por una función de onda^{28,29} que puede escribirse como la superposición de dos eigenfunciones ψ_a y ψ_b . Éstas son soluciones a la ecuación de Schrödinger independiente del tiempo con un hamiltoniano \hat{H}_0 , el cual está dado por las características del sistema atómico en ausencia de campos electromagnéticos, tal que

$$\begin{aligned} \hat{H}_0 \psi_a &= E_a \psi_a, \\ \hat{H}_0 \psi_b &= E_a \psi_b, \end{aligned} \tag{2.34}$$

donde $E_a = \hbar \omega_a$ y $E_b = \hbar \omega_b$ son las eigenvalores de la energía asociados con las funciones de onda ψ_a y ψ_b .

El hamiltoniano que representa al sistema campo-átomo puede escribirse como la suma del hamiltoniano \hat{H}_0 y la energía de interacción con el campo electromagnético, $\hat{V}(t)$. Por consiguiente, las eigenfunciones del hamiltoniano total $\hat{H}(t) = \hat{H}_0 + \hat{V}(t)$ son una superposición lineal de las eigenfunciones ψ_a y ψ_b con coeficientes que dependen del tiempo, $c_a(t)$ y $c_b(t)^{28,29}$

$$\Psi(\boldsymbol{r},t) = c_a(t)\psi_a + c_b(t)\psi_b \tag{2.35}$$

y $\Psi(\boldsymbol{r},t)$ obe
dece la ecuación de Schrödinger

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \hat{H}\Psi.$$
 (2.36)

Introduciendo esta función de onda en la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo se encuentran las ecuaciones que obedecen los coeficientes.

$$\dot{c}_a\psi_a + \dot{c}_c\psi_b = -\frac{i}{\hbar}(c_a\hat{H}\psi_a + c_b\hat{H}\psi_b).$$
(2.37)

Utilizando las propiedades de ortogonalidad de las eigenfunciones, esto es $\langle \psi_n | \psi_m \rangle = \delta_{nm}$, se obtienen

$$\dot{c}_{a} = -\frac{i}{\hbar} \{ c_{a} \langle a | \hat{H} | a \rangle + c_{b} \langle a | \hat{H} | b \rangle \},
\dot{c}_{b} = -\frac{i}{\hbar} \{ c_{b} \langle b | \hat{H} | b \rangle + c_{a} \langle b | \hat{H} | a \rangle \}$$
(2.38)

donde el punto sobre la variable representa la derivada temporal. Se tendría que resolver este sistema de ecuaciones para encontrar las probabilidades c_a y c_b y después encontrar los valores promedio de la susceptibilidad y de la polarización.

Sin embargo, para encontrar los valores promedio de la susceptibilidad y de la polarización solo se necesita es conocer el valor promedio del momento dipolar del ensamble y multiplicarlo por el número de átomos

$$P = N , = Tr(\rho p) = p(\rho_{ba} + \rho_{ab}),$$
(2.39)

para lo cual hay que encontrar ρ_{ba} y ρ_{ab} . Para encontrar las probabilidades de transición se usa la evolución temporal de la matriz de densidad en (2.33). Expresando el hamiltoniano en términos de la parte atómica y la interacción, tal que

las ecuaciones de los elementos de la matriz de densidad son

$$\dot{\rho}_{ba} = -i\omega_{ba}\rho_{ba} + \frac{i}{\hbar}V_{ba}(\rho_{bb} - \rho_{aa}), \qquad (2.41)$$

$$\dot{\rho}_{ab} = i\omega_{ab}\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar}V_{ab}(\rho_{bb} - \rho_{aa}), \qquad (2.42)$$

$$\dot{\rho}_{bb} = \frac{i}{\hbar} (V_{ba} \rho_{ab} - \rho_{ba} V_{ab}), \qquad (2.43)$$

$$\dot{\rho}_{aa} = \frac{i}{\hbar} (V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba}), \qquad (2.44)$$

con $\omega_{nm} = (E_n - E_m)/\hbar$ como la frecuencia de transición. Puede verse que

$$\dot{\rho}_{bb} + \dot{\rho}_{aa} = 0, \tag{2.45}$$

lo cual demuestra que la población total, $\rho_{bb} + \rho_{aa}$, es una cantidad conservada. De la definición de matriz de densidad se sabe que los elementos de la diagonal representan las densidades de probabilidad de encontrar a los átomos en el nivel superior o el inferior. La población en cualquier nivel puede obtenerse con el producto entre la población total y la densidad ρ_{aa} ó ρ_{bb} , por lo tanto

$$\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1. \tag{2.46}$$

Por otro lado, ρ_{ab} y ρ_{ba} , representan las relaciones de fase entre los niveles energéticos superior e inferior. A esta relación de fase se le llama coherencia entre los estados,^{16,26,27} la cual describe como cambia la población entre el estado base y el excitado .

Las ecuaciones (2.41)-(2.44) dan la descripción de procesos ópticos cuando no están presentes procesos de relajación (o decaimiento), en particular los tiempos de vida media naturales de los niveles. Con el fin de considerar los procesos de decaimiento, considérese un sistema de átomos de dos niveles que no interactúan entre sí y preparados de tal forma que todos estén en el nivel superior de energía $|b\rangle$. Experimentalmente se observa que este sistema, en ausencia de perturbaciones externas, decae exponencialmente respecto al tiempo.

Se modifica la ecuación de $\dot{\rho}_{bb}$ en (2.43) para tomar en cuenta el decaimiento de la población del estado superior. La razón de decaimiento del estado superior está definida como

$$\gamma_{ba} = \frac{1}{\tau_{ab}},\tag{2.47}$$

donde τ_{ba} es la vida media del sistema, es decir, el tiempo que tarda una población inicial de N_0 átomos excitados en decaer hasta N_0/e . El número γ_{ba} es igual al coeficiente A de Einstein de emisión espontánea. Así, la ecuación (2.43) se reescribe como

$$\dot{\rho}_{bb} = -\gamma_{ba}\rho_{bb} - \frac{i}{\hbar}(V_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V_{ab}).$$
(2.48)

En ausencia de campo externo, la solución de la última ecuación es

$$\rho_{bb} = \rho_{bb}(0)e^{-\gamma_{ba}t},\tag{2.49}$$

aquí $\rho_{bb}(0)$ es la población inicial del nivel superior. La ecuación de la densidad de población del nivel superior de energía ahora describe la emisión espontánea. Usando la conservación de la población total (2.46), se calcula que la población del estado inferior debe incrementar a la misma razón exponencial que se despobla el nivel superior, esto es

$$\rho_{aa} = 1 - \rho_{bb}(0)e^{-\gamma_{ba}t}.$$
(2.50)

Por otro lado, se sabe que todo decaimiento espontáneo produce una transición que no está relacionada en fase con el campo incidente o la fase de los dipolos. Entonces, deben modificarse los elementos fuera de la diagonal de la matriz de densidad. Normalmente se introduce una razón de decaimiento, γ

$$\dot{\rho}_{ba} = -i\omega_{ba}\rho_{ba} - \gamma\rho_{ba} + \frac{i}{\hbar}V_{ba}(\rho_{bb} - \rho_{aa}), \qquad (2.51)$$

$$\dot{\rho}_{ab} = i\omega_{ab}\rho_{ab} - \gamma\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar}V_{ab}(\rho_{bb} - \rho_{aa}).$$
(2.52)

Es posible obtener la relación entre el decaimiento puramente radiativo y la disrupción de fase, si se impone que cada disrupción de fase está acompañada por un decaimiento del estado superior al inferior. En ausencia de campo, los elementos fuera de la diagonal son integrados para dar

$$\rho_{ba} = e^{-(\gamma + i\omega_{ba})t},
\rho_{ab} = e^{-(\gamma - i\omega_{ba})t}.$$
(2.53)

Debido a que pedimos una relación de correspondencia uno a uno entre el decaimiento y las discontinuidades de fase, la razón de decaimiento del nivel superior y la función de coherencia, $\rho_{ab}\rho_{ba}$, deben ser iguales. Ésto es

$$e^{-2\gamma t} = e^{-\gamma_1 t},$$
 (2.54)

lo que implica

$$\gamma = \frac{\gamma_1}{2}.\tag{2.55}$$

Ya que tenemos la relación entre los decaimientos, es conveniente introducir una forma explicita del la interacción. En la aproximación dipolar para el caso semiclásico de un sistema de dos niveles, se puede considerar al sistema como un ensamble de dipolos inmersos en un campo eléctrico, $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t)$. Cada dipolo individual posee una energía potencial

$$U = -\boldsymbol{p} \cdot \boldsymbol{E}, \tag{2.56}$$

donde p = qr es el momento dipolar eléctrico. El hamiltoniano de interacción para describir la transición de un electrón del estado $|a\rangle$ al estado $|b\rangle$ está dado por el elemento de la matriz de interacción

$$V_{ba} = -\langle b | q \boldsymbol{E} \cdot \boldsymbol{r} | a \rangle, \qquad (2.57)$$

tal que q es la carga del electrón y r es la posición del electrón respecto del núcleo atómico. Por simplicidad se toma al campo eléctrico como un campo escalar monocromático y se supone que los estado son no degenerados. Así, el campo se escribe como

$$E(t) = \frac{1}{2}E_0(\mathbf{r})e^{-i\omega t} + c.c.$$
 (2.58)

Por otra parte, la matriz del momento dipolar eléctrico esta definida como

$$\hat{p} = \begin{pmatrix} 0 & p_{ab} \\ p_{ba} & 0 \end{pmatrix}, \tag{2.59}$$

con $p = p_{ab} = p_{ba} = p^*$. Tomando la componente x del momento dipolar eléctrico $p = p_x = \langle b | qx | a \rangle$, el elemento de interacción es

$$V_{ba} = -\frac{1}{2}pE_0(\mathbf{r})e^{-i\omega t} + c.c.$$
 (2.60)

Por consiguiente, las ecuaciones de la matriz de densidad de un sistema de dos niveles con las razones de decaimiento se reescriben como

$$\dot{\rho}_{ba} = -i\omega_{ba}\rho_{ba} - \gamma\rho_{ba} + \frac{i}{\hbar}V_{ba}(\rho_{bb} - \rho_{aa}), \qquad (2.61)$$

$$\dot{\rho}_{ab} = i\omega_{ab}\rho_{ab} - \gamma\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar}V_{ab}(\rho_{bb} - \rho_{aa}), \qquad (2.62)$$

$$\dot{\rho}_{bb} = -\gamma_1 \rho_{bb} + \frac{i}{\hbar} (V_{ba} \rho_{ab} - \rho_{ba} V_{ab}), \qquad (2.63)$$

$$\dot{\rho}_{aa} = -\gamma_1 \rho_{bb} + \frac{i}{\hbar} (V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba}).$$
(2.64)

Ahora, buscamos soluciones estacionarias para las ecuaciones de los elementos no diagonales de la matriz de densidad. Esta solución es válida para tiempos largos después de que se inicia la interacción con el campo eléctrico. Consecuentemente, se proponen soluciones oscilantes de la forma

$$\rho_{ba} = \sigma_{ba} e^{-i\omega t},
\rho_{ab} = \sigma_{ab} e^{i\omega t},$$
(2.65)
donde σ_{ba}, σ_{ab} son envolventes que varian lentamente con el tiempo. Para tiempos largos, $t \gg 1/\gamma, 1/\gamma_1$, las poblaciones de los estados se vuelven constantes, esto es

$$\dot{\rho}_{aa} = \dot{\rho}_{bb} = 0$$

las envolventes también se vuelven constantes y, por lo tanto, las ecuaciones de la matriz de densidad se reducen a

$$\rho_{ba} = \frac{i}{\hbar} \frac{V_{ba}(\rho_{bb} - \rho_{aa})}{\gamma - i\Delta\omega},$$
(2.66)

$$\rho_{ab} = -\frac{i}{\hbar} \frac{V_{ab}(\rho_{bb} - \rho_{aa})}{\gamma + i\Delta\omega},$$
(2.67)

$$\rho_{aa} = \frac{i}{\hbar \gamma_1} (V_{ba} \rho_{ab} - V_{ab} \rho_{ba}), \qquad (2.68)$$

 $\mathrm{con}\,\Delta=\omega-\omega_{ba}$ conocida como la desintonía. Usando la condición de normalización de la población total, se reescribe la diferencia de las poblaciones

$$\rho_{bb} - \rho_{aa} = 2\rho_{bb} - 1 = -\frac{2i}{\hbar\gamma_1}(V_{ba}\rho_{ab} - V_{ab}\rho_{ba}) - 1, \qquad (2.69)$$

e introduciendo ρ_{ab}, ρ_{ba} , se reescribe como

$$\rho_{bb} - \rho_{aa} = -\frac{2}{\hbar\gamma_1} V_{ba} V_{ab} (\rho_{bb} - \rho_{aa}) \left[\frac{1}{\gamma + i\omega} + \frac{1}{\gamma - i\omega} \right].$$
(2.70)

Al desarrollar el producto $V_{ab}V_{ba}$ se obtienen términos que oscilan al doble de la frecuencia y un campo estático. Considerando que excita a una frecuencia cercana a ω_{ba} , los términos del doble de la frecuencia no van a resonar y, por tanto, pueden ser despreciados. A esto se le llama aproximación de onda rotante y permite obtener

$$\rho_{bb} - \rho_{aa} = -\frac{(\gamma^2 - \Delta^2)}{\gamma^2 + \Delta^2 + \frac{\gamma}{\gamma_1}\Omega^2},$$
(2.71)

donde $\Omega = pE_0/\hbar$ es la llamada frecuencia de Rabi. Cuando no hay campo, la diferencia de población es igual a -1. Esto significa que toda la población se encuentra en el estado base. El otro caso, cuando el campo es muy intenso, las poblaciones son iguales y su diferencia es igual a cero.

Por otro lado, la diferencia de los elementos no diagonales de la matriz de densidad en la aproximación de la onda rotante es

$$\rho_{ba} - \rho_{ab} = \frac{(\rho_{bb} - \rho_{aa})}{\hbar(\gamma^2 - \Delta^2)} \left[-\gamma sin(\omega t) + \Delta cos(\omega t) \right] p^2 E_0, \tag{2.72}$$

o sustituyendo la diferencia de las poblaciones

$$\rho_{ba} - \rho_{ab} = \frac{p^2 E_0}{\hbar} \frac{\gamma sin(\omega t) + \Delta cos(\omega t)}{\gamma^2 + \Delta^2 + \frac{\gamma}{\gamma_1} \Omega^2}.$$
(2.73)

Ya que se tienen las ecuaciones de la matriz de densidad se calcula el valor esperado del momento dipolar promedio del ensamble¹⁶ con este formalismo, el cual esta dado por la ecuación (2.39)

En consecuencia, la polarización macroscópica, $P = N \langle p \rangle$, es

$$P = \frac{Np^2 E_0}{\hbar} \frac{\gamma sin(\omega t) + \Delta cos(\omega t)}{\gamma^2 + \Delta^2 + \frac{\gamma}{\gamma_1} \Omega^2}.$$
(2.74)

Notamos que el primer término de la polarización oscila 90° fuera de fase con respecto al campo incidente y este representa la absorción, mientras que el segundo término, en fase, representa la dispersión. Reescribiendo la última ecuación con la identidad

$$P = Re\left\{(a+ib)e^{-i\omega t}\right\},$$

$$P = Re\left\{\frac{Np^2 E_0}{\hbar} \frac{(i-\frac{\Delta}{\gamma})}{1+\frac{\Delta^2}{\gamma^2}+\frac{\Omega^2}{\gamma\gamma_1}}e^{-i\omega t}\right\}$$
(2.75)

y comparándola con la forma general de la polarización escrita en términos del campo eléctrico y la susceptibilidad que depende del campo

$$P = Re\{\epsilon_0 \chi(E) E_0 e^{-i\omega t}\},$$
(2.76)

se encuentra que la susceptibilidad électrica es

$$\chi(E) = \frac{Np^2}{E_0 \hbar \gamma} \frac{(i - \frac{\Delta}{\gamma})}{1 + \frac{\Delta^2}{\gamma^2} + \frac{\Omega^2}{\gamma\gamma_1}}.$$
(2.77)

La parte real de la susceptibilidad representa la dispersión y la imaginaria la absorción en el caso de un solo haz de bombeo. La presencia del la frecuencia de Rabi en el denominador es un factor que aumenta el ancho de banda de transición, lo cuál depende de la intensidad del campo de bombeo. Así, para intensidades de bombeo pequeñas, es decir, $\Omega^2 << \frac{\gamma_1}{\gamma} \Delta^2$, se recupera la susceptibilidad lineal

$$\chi(E) = \frac{Np^2}{E_0 \hbar \gamma} \frac{(i - \frac{\Delta}{\gamma})}{1 + \frac{\Delta^2}{\gamma^2}}.$$
(2.78)

Sin embargo, si se bombea con más de un haz, la energía de los campos puede intercambiarse entre las partes reales e imaginaras y las partes dispersiva y disipativa de la susceptibilidad ya no son separables. Esto es por la degeneración de estados de energía.

En resumen, se han encontrado las expresiones de la polarización no lineal y la susceptibilidad no lineal a partir del formalismo de la matriz de densidad para un sistema atómico de dos niveles que interactúa con campo eléctrico externo en la aproximación semiclásica.^{6, 16, 21} Este resultado es importante para sistemas en los cuales se excitan átomos o moléculas en resonancia o cerca de resonancia. Además es la base de varios de los estudios teóricos sobre emisión cónica, como se describe más adelante en el capítulo 3.

2.7. Efecto Stark AC

El corrimiento y la separación de las lineas espectrales provocados por la interacción entre un campo eléctrico estático y átomos o moléculas es conocido como efecto Stark. Este efecto fue estudiado por J. Stark³⁰ y también por A. Lo Surdo³¹ en 1913. A pesar de que inicialmente involucraba el caso estático, después se generalizó para poder describir el efecto de campos eléctricos que dependen del tiempo. A esto último se le conoce como efecto Stark AC o efecto Autler–Townes^{III}

El efecto Stark AC es entonces un efecto de tipo dinámico, el cual corresponde al caso en que un campo eléctrico oscilante en el tiempo se sintoniza en resonancia con la frecuencia de una transición de una línea espectral produciendo un cambio en la forma del espectro de absorción y emisión de esa línea espectral. Este cambio en los espectros corresponde aun desdoblamiento de los niveles de energía.

En esta sección se estudia el efecto Stark AC como lo hacen B.H. Bransden y C. J. Joachain.²⁹ Considerando que el campo eléctrico es espacialmente uniforme y depende del tiempo de la siguiente forma

$$\boldsymbol{E}(t) = E_0 \cos\left(\omega t\right) \boldsymbol{\hat{k}}.$$
(2.79)

El hamiltoniano de interacción está dado por

^{III}Nombrado así por Stanley Autler y Charles Townes.³¹

$$\hat{H}_{int}(t) = -E_0 p_z \cos\left(\omega t\right),\tag{2.80}$$

aquí, p_z el momento dipolar en la dirección de propagación. La función de onda para el átomo en presencia de un campo eléctrico satisface la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \hat{H}(t) \Psi(\mathbf{r}, t),$$
 (2.81)

tal que $\hat{H} = \hat{H}_0 + \lambda \hat{H}_{int}$ es el hamilitoniano total. Para resolver el problema se utiliza la teoría de perturbaciones dependiente del tiempo y se propone que $\Psi(\boldsymbol{r},t)$ sea un conjunto ortonormal completo

$$\Psi(\boldsymbol{r},t) = \sum_{k} c_k(t) \psi_k(\boldsymbol{r}) e^{iE_k t/\hbar},$$
(2.82)

aquí ψ_k son las eigenfunciones estacionarias del hamiltoniano sin perturbar \hat{H}_0 , las cuales se asumen ortonormales y que también conforman un conjunto completo. Introduciendo (2.81) en (2.80) se pueden encontrar las ecuaciones acopladas para los coeficientes $c_k(t)$, recordando que $H_0\psi_k = E_k\psi_k$.

Supondremos que el sistema se encuentra inicialmente bien definido en un estado estacionario de energía E_a , descrito por la función de onda ψ_a y que el campo eléctrico se prende a partir del tiempo t = 0. Las condiciones iniciales están dadas por

$$c_k(t \leqslant 0) = \delta_{ka}. \tag{2.83}$$

La amplitud para k = a puede escribirse como

$$c_a(t) = |c_a(t)| e^{-i\eta(t)},$$
 (2.84)

con $\eta(t)$ como una fase real que cumple $\eta(0) = 0$. Con el fin de comprender el significado de la fase se reescribe (2.63) para k = a

$$c_a(t)\psi_a(\boldsymbol{r})e^{-iE_at/\hbar} = \left|c_a(t)\right|\psi_a(\boldsymbol{r})exp\left[-\frac{i}{\hbar}\int_0^t [E_a + \Delta E_a(t')]dt'\right],\quad(2.85)$$

tal que

$$\Delta E_a(t') = \hbar \dot{\eta}(t). \tag{2.86}$$

Se interpreta a $\Delta E_a(t)$ como el corrimiento en la energía del estado a al tiempo t debibo al campo eléctrico.

El primer corrimiento en la energía al primer orden no nulo de teoría de perturbaciones se calcula a segundo orden en la perturbación como

$$c_a(t) \simeq 1 + (i\hbar)^{-2} \sum_{k \neq a} \int_0^t H'_{ak}(t') e^{i\omega_{ak}t'} dt' \int_0^{t'} H'_{ak}(t'') e^{i\omega_{ak}t''} dt''.$$
(2.87)

Utilizando el hecho $H'_{aa}(t) = 0$ y que la amplitud sin perturbar $c_a(t \leq 0) = 1$

$$\dot{c}_a(t) = \left(\frac{d}{dt} |c_a(t)|\right) e^{-i\eta(t)} - ic_a(t)\dot{\eta} \simeq -i\dot{\eta}(t), \qquad (2.88)$$

con esto

$$\Delta E_a(t) = (i\hbar)^{-1} \sum_{k \neq a} H'_{ak}(t) e^{i\omega_{ak}t} \int_0^t H'_{ak} e^{i\omega_{ak}t'} dt'.$$
 (2.89)

La cantidad que interesa de este resultado es el valor promedio de cambio en la energía $\Delta E_a(t)$, el cual se obtiene al promediar $\Delta E_a(t)$ en el tiempo y es a lo que llamamos *corrimiento Stark AC*. Por tanto, el promedio en el tiempo de $\Delta E_a(t)$ es

$$\begin{split} \langle \Delta E_a \rangle &= -\frac{E_0^2}{4\hbar} \sum_{k \neq a} \left| \langle k | D_z | a \rangle \right|^2 \left[\frac{1}{\omega_{ka} + \omega} + \frac{1}{\omega_{ka} - \omega} \right], \\ \langle \Delta E_a \rangle &= -\frac{\bar{E}^2}{\hbar} \sum_{k \neq a} \left| \langle k | D_z | a \rangle \right|^2 \frac{\omega_{ka}}{\omega_{ka}^2 - \omega^2}, \end{split}$$
(2.90)

donde $\bar{E}^2=E_0^2/2$ es el valor promedio de $E^2(t)$ en un periodo $T=2\pi/\omega$

Algunos autores^{5, 32, 33} han propuesto que el efecto Stark intensifica el proceso de mezclado de ondas en la emisión cónica ya que la presencia del campo eléctrico desdobla los niveles de energía y para el caso de dos niveles puede intensificar el acoplamiento paramétrico entre el campo que interactúa con el sistema y las frecuencias adicionales.

En este trabajo no se profundiza en la parte teórica, sin embargo, es importante porque el efecto Stark podría estar intensificando el mezclado de cuatro ondas, de acuerdo con algunos de los modelos.^{5, 33}

Capítulo 3

EMISIÓN CÓNICA ANÓMALA

3.1. Antecedentes de la emisión

En 1970, D. Grischkowski² fue el primero en reportar estructuras anulares semejantes a la emisión cónica anómala (ECA) en vapor de potasio, mientras estudiaba otro proceso no lineal llamado auto-enfocamiento. Al excitar del lado azul (altas fercuencias) la línea de resonacia ${}^{2}S_{1/2} \rightarrow {}^{2}P_{3/2}$ (7665 Å) del potasio con la emisión Raman de un laser de rubí y a temperaturas entre 170°C a 200°C, el haz presentaba un núcleo central rodeado por una estructura difusa con forma de anillo.

Después, en 1979 A. C. Tam³⁴ también encontró estructuras anulares al estudiar la amplificación de bandas laterales en vapor de sodio. Tam excitó la línea D_2 del sodio con un láser cw (500W/cm²) —también del lado azul de la transición— a desintonías desde 1.6 hasta 6 GHz en el intervalo de temperaturas entre 200°C y 250°C. El diámetro de los anillos resulta ser insensible al cambio en la frecuencia del haz incidente y, aparentemente, en resonancia no hay halo; depende de la densidad de vapor y los datos ajustan con la curva dada por

$$\theta = 23(N \times 10^{-13})^{0.40 \pm 0.05} \tag{3.1}$$

donde θ es el ángulo del cono y N es la densidad de átomos por unidad de volumen. El autor discute que el anillo no puede ser explicado por las condiciones de acoplamiento de fase en un proceso de mezclado de ondas porque no depende de la frecuencia de bombeo. Cabe mencionar que en el resto de los trabajos sobre ECA presentados a continuación, la emisión siempre es función de la frecuencia del haz de bombeo.

El primer trabajo sistemático sobre emisión cónica fue realizado por C. H. Skinner y P. D. Kleiber³ en 1980. Ellos estudiaron la emisión en vapor de bario (~ 10^{16} cm⁻³) con un láser de pigmento (~ 1 MWcm⁻²) sobre la transición $6s^2 {}^1S \rightarrow 6p^1P$ (5521Å) sintonizado a 1 nm del lado de altas



Figura 3.1: Espectro típico de ECA para el vapor de Ca.⁶ La transición del Ca tiene una longitud de onda λ_0 , la del láser de bombeo es λ_p y λ_c representa el máximo del espectro de la emisión cónica. Nótese que λ_p y λ_c son simétricas respecto a λ_0

frecuencias. Realizaron estudios del ángulo del cono, el espectro, la polarización y la intensidad como función de la polarización, longitud de onda e intensidad del láser y la densidad de bario.

Encontraron que el pico del espectro de la emisión se encuentra a la misma longitud de onda (o frecuencia) de la transición atómica que el haz incidente pero del lado opuesto de ella (véase fig 3.1); está ensanchado y el ensanchamiento aumenta con la desintonía del láser, y que a eficiencia de conversión del cono resulta de ~ 1 %.

Con respecto a la polarización, ésta se mantiene en la misma dirección que el haz incidente. En cuanto al ángulo del cono, los autores encontraron que aumenta con la densidad del vapor y al sintonizar el láser más cerca de la transición atómica. Otra importante observación fue el auto-enfocamiento² del haz, lo cual hace que la densidad de energía del láser aumente significativamente.

Los autores proponen que la emisión cónica es debida a un proceso de mezclado de ondas y calculan el ángulo del cono suponiendo que la frecuencia del láser, ω_L , se combina con ω_1 y ω_2 —que se suponen co-lineales al láser— y generan una nueva frecuencia ω_c a un ángulo θ . No lograron encontrar las frecuencias ω_1 , ω_2 experimentalmente. Además, las curvas experimentales solo concuerdan de forma cualitativa con el modelo, pero están lejos de ajustar entre ellas.

3.2. Estudios sobre emisión cónica anómala

A partir del trabajo de Skinner y Kleiber,³ surgen una gran variedad de trabajos —teóricos y experimentales— que intentan describir el fenómeno. Entre los modelos teóricos más significativos son los que involucran los siguientes fenómenos: dispersión electrónica Raman estimulada, efectos transitorios, radiación tipo Cherenkov, mezclado de cuatro ondas y, por último, los que involucran de diversos procesos. Sin embargo, ninguno ha podido explicar completamente la emisión cónica.

3.2.1. Modelos que involucran dispersión electrónica Raman estimulada

Los principales artículos que intentan describir la emisión a partir del proceso de dispersión electrónica Raman estimulada son el de A. Tam (mencionado anteriormente) y los trabajos de Shevy *et al.*^{7,8} Se basan en el efecto Raman en sólidos, donde existe un acoplamiento en la radiación incidente y los niveles vibracionales del sólido.

No obstante, los resultados de Tam describen amplificación de bandas laterales (que también son emisiones anulares) y no emisión cónica anómala en sí. Mientras que los de Shevy *et al.* consideran las dos líneas D del sodio, lo cual conforma un sistema de tres niveles, e incluyen desdoblamiento de niveles por efecto Stark AC.

Los sistemas de tres niveles salen de la aproximación de esta tesis, realizada en la sección 2.2. Por lo tanto, no se enfatiza más en estos trabajos.

3.2.2. Modelos que involucran modulación del índice de refracción

Harter *et al.*^{4,5} propusieron un mecanismo para explicar la emisión, el modelo de refracción a la frontera del filamento. Este modelo propone que el haz satura el medio dentro de los filamentos de luz y por lo tanto produce un indice de refracción distinto al que se encuentra afuera de la región del filamento. En un principio, se creyó que el modelo explicaba adecuadamente los resultados experimentales. Sin embargo, Skinner³⁵ demostró que no era así.

Después, Fernández-Guasti *et al.*³⁶ reportaron la ECA en vapor de calcio en presencia de dos haces. Sus observaciones sólo favorecen a este modelo si la coherencia entre los haces fuera necesaria para producir la emisión.

3.2.3. Modelos que involucran efectos transitorios

Los modelos de LeBerre*et al.*,¹¹ Crenshaw¹² y Cantrell¹³ son los que proponen efectos transitorios, pero se ha observado la emisión cónica utilizando láseres continuos¹⁴ (cw¹), por lo tanto se descartan estos modelos para explicar la emisión, al menos en el régimen de intensidades que estos modelos tratan de explicar.

3.2.4. Modelos que involucran radiación tipo Cherenkov

Golub *et al.*⁹ y You *et al.*¹⁰ sugirieron que el cono fuera producto de un proceso que involucra emisión Cherenkov, ya que la emisión cónica tiene la característica de estar corrida al rojo de la transición y un mecanismo tipo Cherenkov produce radiación de menor frecuencia que la incidente, es decir, corrida al rojo. Con el mecanismo descrito por Golub *et al.*, se obtiene una relación entre el ángulo del cono y la densidad de vapor que también cumplen los datos experimentales

$$\theta_c \propto N^{1/2} \tag{3.2}$$

Sin embargo, Chauchard y Meyer^{37,38} observaron que se formaban estructuras anulares del lado azul de la transición atómica. Esto no favorece a los modelos que involucran al efecto Cherenkov porque la emisión Cherenkov solo se encuentra del lado rojo.

3.2.5. Competencia de diversos efectos

Con esto, llegamos a los modelos que proponen la competencia de varios efectos no lineales como el de Valley *et al.*¹⁴ y el de Shevy *et al.*⁷ Este último, por su parte, considera la competencia entre un dispersión de tres fotones y un proceso de mezclado de cuatro ondas.

Mientras que el artículo de Valley *et al.* calcula numéricamente los espectros con una teoría que incluye amplificación del efecto Raman ensanchado por efecto Doppler, mezclado de cuantro ondas, efecto Stark A.C., auto-atrapamiento del haz de bombeo y los efectos de difracción debidos al esparcimiento durante la propagación. Aunque es un modelo complejo —por la combinación de tantos efectos—, los resultados calculados tienen un error entre el 30 y 40 por ciento comparado con los valores experimentales.

¹Por sus siglas en inglés Continuous wave



Figura 3.2: La figura del lado izquierdo representa la interacción de un haz de frecuencia ω_1 con sistema de dos niveles, donde Δ es la desintonía respecto de la transición. En la otra figura vemos el resultado del desdoblamiento de los niveles por efecto Stark, donde Ω' es la frecuencia de Rabi generalizada.

3.2.6. Modelo de mezclado de cuatro ondas

Skinner y Kleiber³ fueron los primeros en proponer que la emisión era producida por algún mezclado de ondas paramétrico, donde la frecuencia del láser, ω_L , se combina con otras dos frecuencias, ω_1 y ω_2 (que se suponen colineales con la frecuencia del láser) y generan la frecuencia del cono, ω_c . Sin embargo, experimentalmente no encontraron estas frecuencias, ni mencionan su posible origen.

Después, Harter *et al.*,^{5,39} proponen que estas ondas de frecuencia ω_1 y ω_2 se intensifican debido al efecto Stark AC (efecto estudiado en la sección 2.3). El efecto de la propagación de un haz intenso sobre un sistema de dos niveles es desdoblar el estado base y el estado excitado en dos pares de niveles, como se muestra en la Fig. 3.2. La magnitud de la separación entre los niveles está dada por la frecuencia de Rabi generalizada

$$\Omega' = (\Omega^2 + \Delta^2)^{1/2}$$
(3.3)

donde Ω es la frecuencia de Rabi y Δ la desintonía. De acuerdo con este modelo, el cono solo ocurre cuando el láser se auto-enfoca, pero en otros artículos se demuestra que el auto-enfocamiento no es necesario.

3.3. Emisión cónica anómala

En este capítulo se hizo una revisión los trabajos teóricos y experimentales más significativos sobre emisión cónica. En resumen, se encuentra que la emisión ha sido observada en varios vapores metálicos: potasio, bario, sodio, estroncio y calcio. Además, de los estudios experimentales sobresalen las siguientes propiedades características del fenómeno:



Figura 3.3: Gráficas de la variación de la mitad del ángulo del cono³³ respecto de (a) la desintonía y (b) la densidad atómica

- El ángulo del cono es proporcional a la raíz cuadrada de la densidad de vapor e inversamente proporcional a la raíz cuadrada de la desintonía láser.^{2,3,5,11,33,36,40,41}
- El espectro del cono no depende de la potencia del láser de bombeo^{36,40}
- El espectro del cono siempre esta ensanchado y separado de la transición la misma distancia que la frecuencia del láser, pero del lado bajas frecuencias^{3,36,40}

La dependencia del ángulo respecto a la densidad de átomos y a la desintonía se ejemplifica en la Fig 3.3 con dos gráficas^{II}, la primera de la variación de la mitad del ángulo del cono respecto a la desintonía y la segunda de la variación de la mitad del ángulo del cono respecto a la densidad de átomos. Mientras que las Fig. 3.1 de la sección anterior y la Fig. 3.4 muestran el espectro característico de la emisión cónica para dos vapores distintos, el primero es en calcio³⁶ y el segundo en bario.³

Sin embargo, como se había mencionado en varias ocasiones, no se tiene un modelo que logre explicar estas características por completo. Varios de los modelos propuesto han sido descartados — el mezclado de ondas propuesto por Skinner y Kleiber³ no se pudo comprobar porque no se encontraron las frecuencias restantes, no está del todo descartado pero tampoco se ha comprobado; los efectos transitorios se descartan al menos en el régimen de intensidades; el modelo de refracción en la frontera^{4,5} también fue descartado, ³⁵ y las observaciones del Meyer³⁷ no favorecen al modelo del tipo efecto

^{II}Estas imágenes fueron tomadas del artículo de R. Boyd*et al.*⁴



Figura 3.4: Espectros de emisión cónica del bario.³

Cherenkov⁹— y otros todavía no han demostrado ser consistentes en su totalidad. Los modelos de 4WM y de efecto Cherenkov aun son de los que aún no están descartados.

Por lo que se refiere a este trabajo, el objetivo principal es estudiar la emisión cónica anómala en dos vapores atómicos (sodio y calcio) desde la perspectiva del mezclado de cuatro ondas^{III}, tal que se utiliza un haz con un vector de onda distinto para cambiar la condición de acoplamiento de fase del 4WM.

De la sección 2.1.2 recordamos que el mezclado de cuatro ondas es un proceso paramétrico, por lo tanto, debe cumplir la condición de acoplamiento de fase para ser eficiente (ecs. 2.26 y 2.27)

$$egin{aligned} \Delta m{k} &= 0, \ m{k_4} &= m{k_1} + m{k_2} + m{k_3}. \end{aligned}$$

La condición de acoplamiento puede modificarse experimentalmente de varias formas. En el mezclado de ondas más simple, la generación de segundo armónico¹⁶ (SHG), se encontró que una de las formas para que la eficiencia del proceso cambiara era rotando el cristal no lineal^{IV}. Por otro lado, en

^{III}Véase Sección 2.1.2 donde se explica con más detalle el mezclado de cuatro ondas

^{IV}En el libro de R. Boyd¹⁶ de óptica no lineal, se encuentra la descripción del proceso con más detalle.

materiales con una birrefringencia que depende fuertemente del la temperatura, se encontró que el acoplamiento de fase podía obtenerse variando la temperatura del cristal.

Los ejemplos anteriores dan la pauta a buscar una variable que permita modificar la condición de acoplamiento de fase. En los experimentos de esta investigación se toma la idea de Wulle y Herminghaus¹⁹ de utilizar haces Bessel^v para modifican la condición de acoplamiento de fase. Los hace Bessel, como se verá más adelante (ec. 4.17), tienen un vector de onda distinto al de un haz Gaussiano (ec. 4.13) para una misma longitud de onda dada. La magnitud del vector de onda de un haz Bessel es

$$|\mathbf{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}\cos\theta$$

donde θ es la variable que se manipula fácilmente en los experimentos, pero depende de la forma en la que se generen los haces Bessel.

El en el capítulo siguiente se hace un repaso de las características principales y diferencias de los dos tipos de haces, Gaussianos y Bessel.

^vVéase el capítulo 4 donde se habla de los haces Bessel.

Capítulo 4 HACES ÓPTICOS

En el presente capítulo se describen las propiedades físicas y de propagación de los haces de luz bajo el régimen de la aproximación paraxial. La primer parte está dedicada a una descripción breve del tratamiento usual de los haces de luz en la teoría ondulatoria escalar a modo de introducción al tratamiento de la propagación de ondas en la aproximación deseada. La segunda parte se enfoca específicamente en los haces Gaussianos y se describen resumidamente sus características principales. Por último, se estudian los haces Bessel con el fin de describir las propiedades que los caracterizan y dan su peso en este trabajo.

4.1. Propagación de la luz

En un medio homogéneo, la radiación óptica no puede hallarse espacialmente confinada ni propagarse sin divergencia angular de manera simultánea a causa de su naturaleza ondulatoria. Las ondas planas uniformes y las ondas esféricas (véase Fig. 4.1) son los dos casos particulares más simples de ondas que ponen de manifiesto esta propiedad ondulatoria. El primer tipo de ondas tiene una energía que se extiende en todo el espacio, sus frentes de onda son planos y sus rayos asociados se propagan paralelos. El segundo tipo se originan en un único punto, pero los correspondientes rayos divergen en todas direcciones y sus frentes de onda son esferas.

A pesar de esto, existen fuentes ópticas, como un láser, que emiten haces luminosos con la capacidad de propagarse sin presentar gran dispersión espacial, y, por tanto, sus rayos forman ángulos pequeños con el eje óptico o eje de propagación. A estos rayos —llamados rayos paraxiales— se les asocian frentes de onda con pequeñas curvaturas. Esta forma de describir a los haces ópticos está considerando tanto la difracción como la naturaleza ondulatoria de la luz en la llamada aproximación paraxial de la teoría ondulatoria escalar.



Figura 4.1: Esquema en 2D de frente de onda para (a) una onda plana y (b) una onda esférica

4.1.1. Ecuación de onda paraxial

Sea la ecuación que gobierna a los campos electromagnéticos en el vacío, la ecuación de onda escalar^{22}

$$\nabla^2 E(\boldsymbol{r},t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(\boldsymbol{r},t) = 0.$$
(4.1)

Suponiendo que la campo eléctrico escalar es monocromático y la parte temporal oscila muy rápidamente, podemos escribirlo cómo

$$E(\mathbf{r},t) = E(\mathbf{r})e^{-i\omega t}.$$
(4.2)

Introduciendo esto en la ecuación de onda nos conduce a la ecuación de Helmholtz

$$\nabla^2 E(\boldsymbol{r}) + k^2 E(\boldsymbol{r}) = 0. \tag{4.3}$$

Si se considera el caso en que los haces se propagan a lo largo del eje z, la amplitud de campo puede escribirse en coordenadas cartesianas como

$$E(x, y, z) = u(x, y, z)e^{-ikz},$$
 (4.4)

tal que la exponencial es la variación a lo largo del eje de propagación con un periodo espacial de una longitud de onda en la misma dirección, y u(x, y, z) es una amplitud de onda escalar compleja que describe el perfil transversal del haz, es decir, las variaciones en x e y. Se dice que ésta varía lentamente con z debido a la difracción y a los efectos de propagación.

La variación transversal y la del perfil del haz con respecto al eje z de propagación, casi siempre son más lentas en comparación con la variación de la onda plana (la parte exponencial) para un haz razonablemente bien colimado. Sustituyendo (4.2) en la ecuación de onda, encontramos



Figura 4.2: Onda plana viajando a un ángulo θ . Esta imagen fue tomada del libro de Siegman.⁴²

$$\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} - 2ik\frac{\partial u}{\partial z} = 0$$
(4.5)

Es fácil ver que se puede despreciar la segunda derivada respecto de z debido a que la dependencia de u(x, y, z) en esta variable es causada por efectos de difracción y, en general, la dependencia es lenta en comparación con la longitud de onda y con respecto a las variaciones transversales debido al ancho finito del haz. Lo anterior se expresa matemáticamente de la siguiente forma

$$\left|\frac{\partial^2 u}{\partial z^2}\right| \ll \left|2k\frac{\partial u}{\partial z}\right|, \left|\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}\right|, \left|\frac{\partial^2 u}{\partial y^2}\right|.$$
(4.6)

Así, despreciando la segunda derivada en z, en la literatura⁴² se dice que la ecuación de onda está en la aproximación paraxial

$$\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} - 2ik\frac{\partial u}{\partial z} = 0,$$

$$\nabla_t^2 u(\boldsymbol{s}, z) - 2ik\frac{\partial u(\boldsymbol{s}, z)}{\partial z} = 0.$$
(4.7)

con $s \equiv (x, y)$ ó $s \equiv (r, \theta)$ como las coordenadas transversales y ∇_t^2 es el operador de estas coordenadas en el plano transversal.

La validez de esta aproximación cubre la descripción de casi todos los resonadores ópticos y problemas de propagación de haces que incluyan láseres. Con el fin de mostrar el límite de la aproximación, se considera que cualquier haz óptico puede verse como la superposición de ondas planas que viajan a distintos ángulos respecto del eje z^{I} . Asimismo, sea la componente de una onda plana que viaja a un ángulo θ con respecto al eje z como se muestra en la Fig. 4.2.

$$E(x,z) = u(x,z)e^{-ikz} = exp[-i(kx\sin\theta + kz\sin\theta)].$$
 (4.8)

De la última expresión vemos que u(x, y) está dado por

$$u(x,z) = exp[-ikx\sin\theta - ikz(1-\cos\theta)].$$
(4.9)

En la aproximación paraxial los ángulos que hacen los rayos con el eje óptico deben ser pequeños, $\theta \ll 1,$ por tanto

$$u(x,z) \approx exp\left[-ik\theta x + ik\frac{\theta^2 z}{2}\right].$$
 (4.10)

Así, las derivadas parciales de u(x, z) toman los valores

$$-i\frac{2k}{u}\frac{\partial u}{\partial z} = 2k^2(1-\cos\theta) \approx k^2\theta^2,$$

$$\frac{1}{u}\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} = -k^2\sin^2\theta \approx -k^2\theta^2,$$

$$\frac{1}{u}\frac{\partial^2 u}{\partial z^2} = -k^2(1-\cos\theta)^2 \approx -\frac{k^2\theta^4}{4}.$$
(4.11)

La última expresión, la derivada segunda respecto de z, es mucho menor que las otras por una razón de $\theta^2/4$. Esto nos permite concluir que mientras todas las ondas planas que conformen un haz viajan a ángulos $\theta \leq 0.5 rad$, la segunda derivada de $u(\mathbf{r})$ será, al menos, un orden de magnitud menor que los otros términos. En definitiva, los haces paraxiales pueden enfocarse o divergir a ángulos de $\approx 30^{\circ}$ antes de que se necesiten correcciones en la aproximación paraxial.⁴²

4.2. Propiedades de los haces Gaussianos

El patrón de propagación luminoso caracterizado por frentes de onda paraxiales y energía concentrada alrededor del eje de propagación recibe el nombre de haz Gaussiano y es una importante clase de solución a la ecuación de Helmholtz paraxial. Los haces Gaussianos son haces de radiación electromagnética monocromática cuyo perfil transversal está descrito por

¹Este análisis es el mismo que realiza Siegman⁴²



Figura 4.3: Perfil de intensidad de un haz Gaussiano.44

una función Gaussiana (véase Fig 4.3). Éstos pueden encontrarse al resolver la ecuación de onda paraxial o vía la integral Fresnel-Kirchoff^{42,43} en la aproximación de Fresnel.

Existen diferentes clases de haces Gaussianos y cada uno tiene una determinada distribución de intensidad en una sección transversal. Sin embargo, el modo más utilizado y el que se utiliza en los experimentos para este trabajo es el modo más simple, el modo transversal Gaussiano (TEM_{00}).

La expresión matemática de un haz Gaussiano en la aproximación paraxial, como la representa Siegman⁴² en su libro, es

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{E}_0 \frac{w_0}{w(z)} e^{\left[\frac{-r^2}{w(z)^2}\right]} e^{\left\{-i\left[\frac{kr^2}{2R(z)} - \phi(z)\right]\right\}} e^{\left[-i(kz - \omega t)\right]}, \qquad (4.12)$$

$$k = \frac{2\pi}{\lambda},\tag{4.13}$$

donde r es la distancia radial desde el eje central del haz, k el número de onda, λ la longitud de onda, $|\mathbf{E}_0| = E_0$ la amplitud del campo eléctrico al tiempo t = 0, w_0 la cintura del haz, w(z) la variación del tamaño del haz con respecto a z, R(z) el radio de curvatura del frente de onda y $\phi(z)$ es la fase de Gouy. Los parámetros que describen por completo al haz Gaussiano, w(z), R(z) y $\phi(z)$, se relacionan con el tamaño del haz en la cintura, w_0 , y la razón z/z_R de la siguiente forma

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2},$$

$$R(z) = z + \frac{z^2}{z_R},$$

$$\phi(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right),$$
(4.14)

tal que $z_R = \pi \omega_0^2 / \lambda$, conocido como el parámetro de Rayleigh, es la distancia que viaja el haz antes de que su diámetro aumente un factor de $\sqrt{2}$ ó antes de que el área del haz sea el doble. Otra forma de expresar esto es con el parámetro confocal, $b = 2z_R$, definido como la distancia entre los puntos donde el tamaño del haz es $\sqrt{2}w_0$.

La variación del tamaño del haz w(z) con respecto a la distancia nos dice que mientras más pequeño sea el tamaño de la cintura, el haz divergirá más rápido debido a la difracción; en otras palabras, se mantiene colimado una distancia menor en campo cercano y diverge con grandes ángulos a campo lejano. La Fig. 4.3 muestra gráficamente la región de la cintura del haz, cómo están definidos el parámetro de Rayleigh y el parámetro confocal, y el perfil de intensidad.

Al usar la aproximación paraxial, lo anterior solo es válido para $w_0 \gg \lambda$. Se utilizan los haces Gaussianos por la simplicidad de su estructura matemática, las aproximaciones que permite, y las ventajas de su manejo a la hora de hacer experimentos. De hecho, la mayor parte de la óptica física y el diseño de sistemas ópticos está basada en las características de estos haces, pero la difracción es una cualidad limitante con respecto a la propagación de los haces Gaussianos.

4.3. Haces Bessel

Un haz Bessel es un haz cuyo perfil transversal de intensidad está descrito por una función Bessel de primera especie. Como se ha mencionado anteriormente, en 1987 Durnin¹⁸ encontró que estos haces son una solución singular a la ecuación de onda escalar, ya que son no difractivos; esto es, que su patrón de intensidad en un plano transversal a la propagación no se ve alterado cuando la propagación es en el espacio libre.

La propiedad de adifraccionalidad es crítica en la óptica física, porque recordando que la difracción es un fenómeno intrínseco de la naturaleza ondulatoria de la luz, los autores mostraron que los haces Bessel son sorprendentemente resistentes a la difracción en comparación con la propagación de los haces Gaussianos. Desde su descubrimiento se han aplicado a una gran cantidad de áreas en la física.⁴⁵

4.3.1. Propiedades de los haces Bessel

Si se aplica la separación de variables en coordenadas cilíndricas a la ecuación de Helmholtz (4.3) y se considera que la onda es azimutalmente simétrica y se propaga en la dirección z positiva, el campo escalar puede escribirse como

$$E(\mathbf{r},t) = \mathcal{E}(\rho)e^{i(k_z z - \omega t)}e^{\pm im\phi}, \qquad (4.15)$$

donde $\rho=(x^2+y^2)^{1/2}$ y la restante ecuación diferencial por resolver en la variable ρ es la ecuación diferencial para funciones de Bessel

$$\frac{d^2\mathcal{E}}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho}\frac{d\mathcal{E}}{d\rho} + (k^2 - k_z^2)\mathcal{E} = 0.$$
(4.16)

Resolviendo la ecuación para la variable $\rho,$ se encuentra que la solución a la ecuación de Helmholtz es

$$E(\mathbf{r},t) = E_0 J_m(k_\rho \rho) e^{\pm im\phi} e^{i(k_z z - \omega t)},$$

$$k^2 = k_\rho^2 + k_z^2,$$
(4.17)

donde E_0 es una constante, J_m es la función Bessel de primera clase; k_ρ , k_z son los números de onda radial y longitudinal, respectivamente, y k es la magnitud del vector de onda. La ecuación (4.17) describe a los haces Bessel ideales de orden m, los cuales tienen una profundidad de campo infinita, se extienden infinitamente en la dirección radial, no exhiben esparcimiento a pesar de poseer un perfil de intensidad muy angosto con anchos efectivos tan pequeños como algunas longitudes de onda ($3\lambda/4$), y contienen energía infinita, por lo cual no pueden ser generados físicamente.

Cuando m=0 se tiene un haz Bessel de orden cero. También existen haces Bessel de orden superior (m>0), los cuales tienen una singularidad en la fase a lo largo del eje del haz y, por tanto, tienen un mínimo no difractivo en vez de un máximo.⁴⁵

La adifraccionalidad de los haces Bessel fue la propiedad que más llamó la atención tras su descubrimiento. Esta adifraccionalidad implica que el perfil de intensidad promediado en el tiempo en el plano z = 0 es igual para todo z > 0, esto es



Figura 4.4: (a) Espectro angular de un haz Bessel. (b) Vectores k propagándose sobre la superficie de un cono.

$$I(x, y, z \ge 0) = I(x, y, z = 0) = \frac{1}{2} | E(\mathbf{r}, t) |^2$$
 (4.18)

Una forma de visualizar a los haces Bessel es considerando un conjunto de ondas planas propagándose sobre un cono. Cada onda que se propaga tiene el mismo cambio de fase en una distancia Δz . Esta visualización se manifiesta en el espectro angular del haz, el cual es un anillo en el espacio de k como se muestra en la Fig. 4.4. Esto permite caracterizar a los haces mediante el ángulo que forman los vectores de onda con el plano

$$\alpha = \tan^{-1} \frac{k_{\rho}}{k_z},\tag{4.19}$$

el cual permite definir el tamaño del spot central del haz

$$r_0 = \frac{2.405}{k_\rho}.$$
 (4.20)

Los haces que se generan en el laboratorio son sólo una aproximación, por ello, la intensidad del pico central presenta oscilaciones en función de la distancia sobre la cual se propaga. Esta consecuencia ha sido estudiada para tratar de reducir las oscilaciones del máximo central por varios autores.⁴⁶ En el caso realizado por Durnin *et al.*, la amplitud está modulada por la envolvente debido a la difracción de la apertura circular y puede despreciarse cuando el tamaño de la apertura cumple

$$\Delta d \ll \frac{\lambda f}{R}.\tag{4.21}$$

Otra propiedad de los haces Bessel es la reconstrucción. El perfil de los haces se vuelven a crear tras haber pasado por un obstáculo. La distancia a

la cual se reconstruye esta dada por

$$z_{min} \approx \frac{ak}{2k_z},\tag{4.22}$$

donde a es el ancho del obstáculo medido desde el centro del haz.

En cuanto a la energía del haz, se encuentra distribuida equitativamente entre los anillos, lo cual implica menor energía en el núcleo central mientras más anillos haya. La ventaja de la gran cantidad de anillos es que aumenta la distancia de propagación. Durnin *et al.*¹⁸ también demostraron que un haz Bessel puede transportar energía tan eficientemente como un Gaussiano y que la profundidad de campo de un Bessel puede aumentarse a expensas de la potencia en el máximo central. Estas características son las que se han tomado en cuenta en la realización de experimentos con haces Bessel.

Una propiedad de los haces Bessel que no ha sido explotada como la adifraccionalidad y la reconstrucción es la componente longitudinal del vector de onda. Esta componente es

$$|\mathbf{k}| = \frac{2\pi}{\lambda} \cos \theta. \tag{4.23}$$

Como veremos más adelante, fue justamente en óptica no lineal donde por primera vez se propuso¹⁹ utilizar haces Bessel para cambiar la condición de acoplamiento de fase. Sin embargo, la manipulación de del vector de onda del haz Bessel depende de la forma en la que se generan, por lo que antes de explicar a detalle la importancia del vector de onda para este trabajo, primero se discuten los métodos para producirlos haces Bessel.

4.3.2. Generación de haces Bessel

La generación de haces Bessel puede llevarse a cabo de varias formas. La primera fue la realizada por Durnin *et al.*¹⁸ utilizando el hecho de que los haces Bessel pueden verse como la transformada de Fourier de un anillo. Con lo anterior, los autores colocaron una apertura anular en el plano focal posterior de un lente que era iluminada por una haz Gaussiano para formar los Bessel. El ángulo de apertura del cono está dado por

$$\tan\gamma = \frac{d}{2f},\tag{4.24}$$

tal que d es diámetro de la apertura y f es la distancia focal de la lente. La distancia de propagación puede estimarse como



Figura 4.5: Bosquejo de cómo una lente axicón genera haces Bessel

$$z_{max} = \frac{R}{\tan\gamma},\tag{4.25}$$

siendo R el radio de la lente. Este método es un tanto ineficiente debido a que la mayor parte de la potencia inicial (la del haz Gaussiano) es obstruida por la apertura.

Existen otras formas de generar haces Bessel. Una es usando técnicas holográficas^{47,48} las cuales dan la fase apropiada a un haz Gaussiano entrante para producir el Bessel. Otros han generado haces Bessel con cavidades Fabry-Perot^{48,49} y una apertura anular o dentro de una cavidad láser de Ar⁺.⁵⁰ En un artículo que estudia la óptica no lineal usando haces Bessel, se utilizó el método de Turunen *et al.*,⁵¹ el cual consiste en un arreglo de círculos concéntricos parecido a una placa de zona de Fresnel, pero con un incremento de radio constante de un círculo al siguiente.

Poco tiempo después de la demostración de los haces Bessel de orden cero (m = 0), Vasara *et al.*⁴⁷ generaron haces de orden superior con hologramas creados en computadora. Después se generaron con moduladores espaciales,⁴⁸ iluminando un axicón con haces Laguerre-Gauss⁵² y también con haces Bessel de orden cero propagándose a través de un cristal biaxial. Existen muchos más trabajos con haces de orden superior, no obstante, estos salen del objetivo de este trabajo.

Otra forma de crear un haz Bessel es utilizando una lente cónica, llamada axicón^{49, 53} como el que se muestra en la Fig. 4.5. Debido a que en el presente se producirán haces Bessel utilizando un axicón, a continuación se profundiza más sobre este método.

Generación de haces Bessel mediante una lente axicón

El ángulo de apertura en este método esta dado por el índice de refracción y el ángulo del axicón.

$$\theta = (n-1)\gamma,\tag{4.26}$$

donde d es el índice de refracción del material y γ el ángulo de apertura como se muestra en la Fig 4.5. El área sombreada en la figura es la región donde se genera el haz Bessel.

La distancia máxima de propagación, por tanto, está dada por

$$z_{max} \approx \frac{w_0}{\theta}.\tag{4.27}$$

Este método es mucho más eficiente que el anterior, porque no se obstruye la luz. También mejora porque disminuye la oscilación del máximo de intensidad usando un axicón. Es necesaria una buena alineación de la lente, ya que cualquier iluminación oblicua produce astigmatismo y se distorsiona el patrón esperado.

La descripción matemática de la generación de haces Bessel mediante una lente axicón siempre está basada en la teoría integral de la difracción de Fresnel.

Oto Brzobohaty *et al.*⁴⁶ describen detalladamente la formación de un haz Bessel ideal haciendo uso de una lente axicón perfecta, es decir, de extensión infinita y una punta del cono sin achatado. La iluminación de esta lente con una onda plana refracta dos vectores de onda y éstos ahora se propagan cubriendo la superficie de un cono, como se mencionó anteriormente. El haz Bessel es el producto de la interferencia entre las dos ondas refractadas y está descrito por una función delta. Este espectro es una función delta para el Bessel ideal. Por otro lado, si el axicón ideal es iluminado por un haz Gaussiano (véase Fig. 4.6a), el espectro ahora aumenta en extensión mientras que disminuye la cintura del haz, w_0 . Con esto, la distribución de intensidad ya no es uniforme a lo largo del eje de propagación y que sólo existe en un intervalo limitado por

$$z_{max} = w_0 \frac{\cos \alpha_0}{\sin \alpha_0},\tag{4.28}$$

tal que α_0 está relacionado con los parámetros de la lente de la siguiente forma

$$\alpha_0 = \arcsin\left[\frac{n}{n_0}\cos\left(\frac{\tau}{2}\right)\right] + \frac{\tau - \pi}{2} \approx \frac{n - n_0}{n_0}\frac{\pi - \tau}{2}.$$
 (4.29)



Figura 4.6: Haces Bessel generados por (A) un axicón ideal y (B) un axicón de punta achatada.⁴⁶

El campo eléctrico después del axicón está descrito por

$$E(\rho, z) = E_0 \sqrt{\frac{2\pi k z w_0 \sin(\alpha_0)}{z_{max}}} e^{-[\frac{z^2}{z_{max}^2} + \frac{i\pi}{4}]} J_0[k\rho \sin(\alpha_0)] e^{[ikz\cos(\alpha_0)]}, \quad (4.30)$$

donde k es el número de onda angular y ρ es la distancia radial al eje óptico z. La distribución de intensidad para este campo eléctrico es

$$I(\rho, z) = \frac{4Pk\sin(\alpha_0)}{w_0} \frac{z}{z_{max}} J_0^2 [k\rho\sin(\alpha_0)] exp\left(-\frac{2z^2}{z_{max}^2}\right),$$

$$\equiv I_0(z) J_0^2 \left(2.4048 \frac{\rho}{\rho_0}\right),$$
(4.31)

tal que P es la potencia total del haz Gaussiano incidente y el radio del centro es $\rho_0 = 2.4048/k \sin(\alpha_0)$, el cual tiene muy alta intensidad en comparación con un haz Gaussiano. A este haz tipo de haz Bessel generado por la iluminación del axicón perfecto mediante un haz Gaussiano se le llama haz cuasi-Bessel o Bessel, pero por simplicidad solo lo llamaremos Bessel. La Fig. 4.6 ejemplifica los perfiles de intensidad radial y axial de esta situación. Lo que Oto Brzobohaty *et al.* estudian en su artículo es la oscilación del perfil de intensidad producida por curvaturas en la punta del axicón y los efectos de difracción de las orillas de la lente cónica. Los autores muestran que un filtro espacial en el plano de Fourier perfecciona la distribución espacial del haz y elimina la modulación. Usualmente se desprecia la difracción debido a los bordes, si la cintura del haz Gaussiano que ilumina el axicón es menor que la mitad del radio del axicón, pero aún queda la modulación producida por la punta curva y no idealmente picuda de la lente.

A detalle lo que sucede es que la curvatura de la punta (véase Fig. 4.6b) enfoca parte del haz Gaussiano incidente que se propaga cerca del eje óptico y crea una onda casi esférica después de la lente cónica. Esta onda interfiere con la Bessel lo cual produce una modificación significativa de la distribución de campo cerca de la punta del axicón y también a campo lejano. La componente axial del vector de onda de la onda esférica es igual a k sobre el eje óptico, mientras que la componente axial del Bessel es igual a $k_z = k \cos(\alpha_0)$. Por consiguiente, las dos ondas que se co-propagan con distintas longitudes de vector de onda interfieren en el eje óptico y crean una modulación de la intensidad axial del haz con un periodo $\lambda/[1 - \cos(\alpha_0)]$. La profundidad de la modulación disminuye en función del aumento de la distancia al axicón, ya que disminuye la intensidad de la onda esférica que diverge, como se muestra en la Fig. 4.5b, a diferencia de la modulación que se produce con el método de apertura circular.

La descripción matemática de la generación de haces Bessel mediante un axicón casi siempre se basa en la teoría integral de la difracción de Fresnel, aunque la expresión analítica sólo es buena aproximación en el área cercana al eje de propagación. En el artículo de Ming Lei y Baoli Yao⁵⁴, se deduce una nueva forma de la expresión analítica para describir el perfil del haz generado por una lente axicón iluminada por un haz Gaussiano con base en la teoría de interferencia. Con esta derivación se puede calcular el perfil de intensidad del haz en cualquier posición después del axicón dentro y fuera de la región sombreada de interferencia y los resultados experimentales concuerdan con el resultado analítico. No se ahondará en el resultado teórico, ya que nos interesa más utilizar las propiedades ya reportadas.

En su artículo, los autores compararon sus resultados teóricos con los obtenidos haciendo pasar el haz de un láser de argón (514.5nm) con perfil Gaussiano y diámetro de 10mm a través de un axicón con ángulo de apertura de 1°, índice de refracción de 1.5 y diámetro de 30mm. Este tipo de arreglos produce haces Bessel de orden cero y su distancia máxima de propagación fue $z_{max} = 572nm$ sin presentar dispersión. Observaron que el diámetro del

haz central y el espacio entre anillos cambia muy poco tanto en la simulación como en la realización experimental. Otra característica que obtuvieron con ambos métodos fue que para distancias mayores a z_{max} , el centro del haz tiene un mínimo, por tanto es un centro oscuro, lo cual no se puede calcular con la tradicional teoría de la difracción de Fresnel.

4.3.3. Aplicaciones

Manipulación óptica

Gracias a su capacidad de superar el límite del rango de Rayleigh de un haz Gaussiano del mismo tamaño sin sufrir dispersión debido a la difracción, los haces Bessel son considerados muy útiles en guiar partículas en pinzas ópticas. La implementación de los haces Bessel, demostrada por Artl *et al.*,⁵⁵ surge debido a que en las pinzas ópticas convencionales (con haces Gaussianos) tienen la limitación de una rápida divergencia cuando está fuertemente enfocado, porque mientras más enfocado se encuentre un haz, más rápido diverge. Por esto, una trampa de un solo haz únicamente es útil cerca de la región focal.

La mayor desventaja que tienen los haces Bessel para esta aplicación es la de no tener un foco específico y, por consiguiente, no puede generarse una trampa en tres dimensiones. Por otro lado, las ventajas que brindan los haces Bessel es la capacidad de atrapar con el núcleo central objetos largos y delgados; atrapar simultáneamente partículas de alto y bajo índice de refracción en las regiones brillantes y oscuras de sus anillos, respectivamente; la propiedad de reconstrucción de un Bessel ayuda a atrapar de varias partículas separadas una distancia espacial requerida en una dimensión y manipularlas simultáneamente. Por otro lado, los haces Bessel de orden superior también puede usarse para micro-manipulación, pero se descubrió que podían usarse para estudiar el momento angular orbital de los haces de luz y cómo se transfiere a las partículas.⁴⁵

Del lado de física atómica, el enfriamiento y el atrapamiento láser son técnicas de gran importancia, en particular para experimentos de condensados de Bose-Einstein (BEC). El uso de haces de luz a escala atómica es similar a lo que se hace en pinzas ópticas, se utiliza la fuerza gradiente o dipolo óptico inducido por la luz. Aquí, el gradiente de fuerza depende de la desintonía con respecto a una transición atómica y los átomos se verán atraídos o repelidos. La adifraccionalidad de los haces Bessel son de gran ayuda para la guía de átomos por grandes distancias.

Óptica no lineal

En esta rama, se han intentado intensificar los efectos no lineales a través del uso de haces Bessel, ya que éstos presentan un pico central con mayor intensidad que los haces convencionales, haces Gaussianos. Wulle y Herminghaus¹⁹ fueron los primeros en tratar de mejorar la generación de segundo armónico (SHG). Encontraron que la eficiencia de acoplamiento de fase depende del vector de onda longitudinal del haz Bessel y que se podía sintonizar enfocando el haz. Concluyeron que los haces Bessel podían usarse en condiciones en las cuales el acoplamiento de fase fuera difícil de lograr con haces Gaussianos.

Después de ellos, Shinozaki *et al.*⁵⁶ en 1997 y J. Arlt *et al.*⁵⁷ en 1999, realizaron estudios sobre la eficiencia de conversión del segundo armónico. Los primeros calcularon que usar un haz Bessel era 48 % más eficiente que un haz Gaussiano convencional, pero fue debida a un modelo de haz Bessel simplificado, el cual no toma en cuenta las variaciones de la intensidad a lo largo del eje del haz (de las cuales se habló en las secciones 4.3 y 4.3.2). Fueron Arlt *et al.*⁵⁷ quienes encontraron que la eficiencia de conversión era menor para los haces Bessel e incluso no podía superar la eficiencia del haz Gaussiano mejorado de Boyd-Kleinman.⁵⁸

También se encontró⁴⁵ que los haces Bessel se ocupan en los osciladores paramétricos ópticos (OPO). Pero lamentablemente, tampoco se encontró que fuera más ventajoso usar un haz Bessel que uno Gaussiano.

A pesar de que los haces Bessel no han dado una ventaja sobre los haces Gaussianos en las aplicaciones mencionadas, sabemos, de la sección 3.3 del capítulo anterior, una vez superado el umbral de potencia para producir ECA, el ángulo del anillo ya no depende de la intensidad de láser de bombeo. Por lo tanto, la propiedad relevante de los haces Bessel en este trabajo es la estructura de su vector de onda (ec. 4.23) la cual es diferente a la del haz Gaussiano (ec. 4.13). Entonces, suponiendo que la emisión cónica es producida por un mezclado de ondas, cambiar el vector de onda del haz modificará la condición de acoplamiento de fase a una misma longitud de onda y por ende el ángulo del anillo será diferente.

Capítulo 5

DISEÑO EXPERIMENTAL

El arreglo experimental utilizado para los experimentos de este trabajo es similar a los de la bibliografía citada^{3, 5, 36, 40} en el capítulo 3. El arreglo está representado en la Fig 5.1, donde las llaves indican que alguno de los dos elementos era utilizado, pero no al mismo tiempo. En general, consiste de un láser de *Nd:YAG* pulsado de alta energía de la marca Continuum^{® 59} como láser de bombeo —-duplicado en frecuencia para los experimentos de sodio (532 *nm*) y triplicado en frecuencia para los experimentos de calcio (355 *nm*); un láser de pigmento sintonizable — de rodamina para el sodio y de stilbina para el calcio—; una lente axicón de 1°, tallada en el laboratorio de óptica del INAOE; un horno para contener los vapores, y como equipo de detección, un espectrómetro CCS100, una cámara CCD (ambos de Thorlabs, Inc.) y una cámara profesional Nikon[®] D600.

Para producir emisión cónica, bombeábamos el láser de pigmento con el láser de *Nd:YAG* con el armónico que fuera necesario, dependiendo si el medio no lineal a excitar era calcio o sodio. La luz láser que salía del láser de pigmento se enfocaba en el centro del horno. Cuando se quería producir el fenómeno con haces Gaussianos se utilizaba una lente convexa y cuando se necesitaba utilizar haces Bessel, se enfocaba el haz con el axicón.

Después, se utilizaba un divisor de haz para redirigir $\approx 10\%$ de la emisión hacia el espectrómetro y el resto se dejaba seguir en la dirección de propagación para ser fotografiada sobre una pantalla. Se tomaron fotografías a tres desintonías para cada tipo de haz, las cuales se analizarán en el siguiente capítulo. Por completes, en el apéndice A se presenta el procedimiento seguido para la producción de emisión cónica anómala con ambos haces y la colección de datos.



Figura 5.1: Arreglo óptico para la producción de emisión cónica anómala con haces Gaussianos y Bessel. Los corchetes indican que se ponía uno u otro elemento, ya sea la lente o el axicón y el espectrómetro o la CCD.

5.1. Vapores atómicos

5.1.1. Vapor de sodio

El sodio es un metal alcalino utilizado frecuentemente para estudiar efectos ópticos no lineales. Las transiciones normalmente utilizadas son las llamadas líneas D. La línea D_2 es la transición $3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{3/2}$ con longitud de onda en el vacío λ_{D_2} =589.158 nm, y la D_1 es la transición $3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{1/2}$ con longitud de onda λ_{D_1} =589.757 nm^I.

Nótese que las transiciones están muy juntas. Por esta razón, generalmente es considerado un sistema de tres niveles, ya que es fácil que haya interacción con y entre ambas líneas y no sólo con una de ellas (véase Fig. 5.2)

De las dos transiciones, la D_2 es la más utilizada en experimentos de óptica, óptica atómica y óptica cuántica ya que tiene un momento dipolar mayor⁶¹ que la D_1 . Además, la emisión cónica se ha estudiado como sistema de tres niveles.^{7,8}

En los experimentos descritos aquí, se utilizó vapor de sodio metálico, el cual puede obtenerse a temperaturas desde 250° C. Por simplicidad, no se considera el sistema de tres niveles, por lo que se requieren condiciones experimentales específicas para interactuar solo con una de las líneas. La condición más importante es que el ancho de banda del láser de pigmento debe ser mucho menor que la separación entre las líneas ($\approx 0.6 nm$).

Se eligió realizar los experimentos con la línea D_2 porque tiene un momento dipolar⁶¹ mayor que el de la línea D_1 . Las transiciones de la línea D_2 son las componentes de un doblete con estructura fina y cada uno de ellos

¹Estos datos fueron obtenidos de la página oficial del NIST⁶⁰



Figura 5.2: Diagrama parcial del los niveles de energía del Na

tiene su propia estructura hiperfina que considerar.

La estructura fina es el resultado del acoplamiento entre el momento angular orbital L del electrón de valencia y su momento angular de espín S.^{28,61} Entonces, el momento angular total del electrón es

$$J = L + S \tag{5.1}$$

y este debe tener un valor dado por

$$|L - S| \le J \le L + S \tag{5.2}$$

La energía de cualquier nivel se corre de acuerdo al valor de J.

Otro corrimiento observado en los niveles de energía es la estructura hiperfina,^{28,61} la cuál resulta del acoplamiento de J con el momento angular nuclear total I. El momento angular atómico total F está dado por

$$F = J + I \tag{5.3}$$

y, análogamente, la magnitud de *F* toma los valores

$$|J - I| \le F \le J + I \tag{5.4}$$

Los niveles de energía se desdoblan de acuerdo con el valor de F.

El corrimiento por estructura fina es lo suficientemente grande para ser detectado por muchos láseres, es decir, se pueden resolver las dos líneas completamente.

Otro factor que puede ser crucial al trabajar con sodio y de la cercanía entre los niveles es que, a pesar de tener la suficiente resolución en el espectrómetro, la línea D_1 pueda interactuar con la emisión.



Figura 5.3: Diagrama parcial del los niveles de energía del Ca I

5.1.2. Vapor de calcio

El vapor de calcio, también es un medio no lineal usado frecuentemente. Este puede considerarse un sistema de dos niveles, ya que de la transición $3p^64s^2$ ${}^1S_0 \rightarrow 3p^64s4p \, {}^1P_0$ —correspondiente a una transición de longitud de onda en el vacío de λ_{Ca} =422.67 nm del Ca I⁶²— está débilmente acoplado con el triplete $4s4p^3P_1$ con λ =657.27 nm (véase Fig. 5.3). Esta condición elimina el problema de que la emisión interactúe con algún otro estado, como en el caso del vapor de sodio.

El momento angular del Ca I es cero, por consiguiente no presenta estructura hiperfina. El estado excitado es tres veces degenerado y la degeneración se hace evidente al hacer experimentos de mezclado de ondas con distinta polarización. Para el caso del experimento reportado aquí, no es relevante.

La transición atómica se ve ensanchada a causa de colisiones con otros átomos de la misma especie y con átomos del gas buffer (Ar). También se ensancha por la potencia láser de bombeo y por efecto Doppler. Estos mecanismos de ensanchamiento ya han sido estudiados,^{6,63} pero no se consideran en el análisis de resultados de este trabajo.

5.2. Láser de bombeo

El bombeo láser es el acto de transferir energía de una fuente externa hacia el medio activo. La energía es absorbida por el medio, lo que produce la excitación de estados. Cuando el número de electrones en un estado excitado excede el número de electrones en el estado base, se logra la inversión de población. Bajo esta condición, la emisión estimulada es factible y el medio puede actuar como un láser o como un amplificador óptico. Usualmente, la energía de bombeo es mediante luz o corriente eléctrica, pero también se han utilizado reacciones nucleares o químicas.^{43,63}

El láser de bombeo utilizado en los experimentos fue un Nd:YAG pulsado de alta energía (MiniliteTMII) de la marca Continuum[®], ⁵⁹ el cuál emite en 1064 nm y está equipado con un doblador, un triplicador y un cuadruplicador de frecuencia.

Se usaron el segundo y tercer armónico como bombeo de láser de pigmento sintonizable de rodamina 610 y de stilbina para sodio y calcio, respectivamente. Los cuales se describirán en la siguiente sección.

La longitud de onda fundamental del láser de Nd:YAG tiene una potencia de fábrica de 50mJ por pulso a una repetición de 10Hz y el ancho temporal del pulso es de 8*ns*. En el segundo armónico la potencia máxima es de 25mJ. En el tercer armónico la máxima potencia de fábrica es de 8mJ y la máxima medida fue de 6.36mJ a una repetición de 3Hz.

5.3. Láser de pigmento sintonizable

Los láseres de pigmento sintonizables han sido de suma importancia para la óptica ya que permiten sintonizar la frecuencia de excitación alrededor de las frecuencias de una transición atómica y, con ello, observar una gran variedad de procesos ópticos lineales y no lineales en medios diluidos como vapores atómicos y moleculares.^{15,63}

Los pigmentos son moléculas orgánicas con enlaces dobles conjugados, es decir, con enlaces covalentes dobles entre átomos de carbono separados por un enlace simple.⁶⁵ Los dobles enlaces constan de un enlace σ y el otro



Figura 5.4: Esquema de la cavidad Littman-Metcalf^{6,64,65} con flujo del pigmento.



Figura 5.5: Fotografías de la cavidad Littman-Metcalf 6,64,65 con flujo del pigmento para (a)rodamina y (b)stilbina.

 π . Estas moléculas son casi planas y los enlaces π se encuentran por arriba y por debajo de la molécula a lo largo de la cadena formada por ellos. En una primera aproximación, los electrones de los pigmentos se mueven en un pozo de potencial cuya longitud es igual a la longitud de la molécula.

Los espectros de emisión y absorción de los pigmentos tienen un ancho de banda de alrededor de 50 a 70 *nm* cuando son bombeados con una lámpara de destello o con un láser.

Al ser moléculas muy largas y con muchos enlaces, existen una gran cantidad de modos de vibración y rotación para cada nivel de energía, lo cual ensancha los espectros. Además, si el pigmento está disuelto en algún solvente —agua, alcohol, etc.— la interacción de los campos de las moléculas del solvente con el pigmento ensancha cada uno de los subniveles dando lugar a espectros cuasicontinuos.

Esto último implica que los espectros de emisión y absorción de los pigmentos dependen tanto de la estructura molecular de éste, así como del solvente, la concentración y la temperatura.

Ahora, si se coloca el pigmento dentro de una cavidad selectiva adecuada, se pueden producir emisión láser a distintas longitudes de onda con los pigmentos.

La cavidad utilizada es una tipo Littman-Metcalf,^{6,64,65} con algunas modificaciones. La Fig 5.4 muestra un bosquejo de la cavidad. La configuración consiste en dos lentes cilíndricas que enfocan el haz de bombeo en una linea sobre una celda de cuarzo. En una de las caras paralelas al haz se coloca un espejo de 1" de diámetro, el cual refleja la fluorescencia del pigmento hacia una rejilla de difracción de 2400 líneas/mm. Se diseñó una montura especial para la celda, la cual la inclina 12°, como se muestra en a Fig 5.5. Esta in-



Figura 5.6: Cavidad tipo Littman-Metcalf del láser sintonizable de rodamina.

clinación es necesaria para que no se forme una cavidad entre las paredes de la celda y el espejo fijo (M1 en la Fig 5.4) y sus modos compitan con la cavidad sintonizable. Lo que hace notoria la inclinación en la Fig 5.5 son las reflexiones del haz dentro de la celda.

La rejilla de difracción se alinea a ángulo rasante y frente a esta va un espejo de 2" de diámetro que refleja el primer orden de difracción por la misma trayectoria de incidencia. Variando el ángulo de que forma la rejilla con el espejo se obtiene la sintonización láser.

Al ser experimentos con bombeo pulsado, el pigmento se degrada fácilmente, por esto se construyó un sistema que hiciera fluir el pigmento a través de la celda, como se ejemplifica en la Fig. 5.4. En las Figs. 5.5 y 5.6 se ven las mangueras que salen de la celda. Éstas van a la bomba que hace fluir el pigmento. Es importante resaltar que los elementos de la bomba de flujo tienen que ser resistentes a los solventes (etanol o metanol), para que no sean corroídos por los mismos.

Además, se añadió un etalón intracavidad entre la celda de pigmento y la rejilla de difracción para disminuir el ancho de banda del láser, ya que para los experimentos con sodio era imprescindible tener un ancho de banda adecuado para poder estimular cada una de las líneas D por separado.

5.3.1. Configuración tipo Littman-Metcalf

Los factores más importantes que limitan el ancho de banda en este tipo de configuración son: el tamaño finito de la rejilla, la divergencia del haz que proviene de la celda y la divergencia del haz reflejado por el espejo.

El ancho de banda reportado para la configuración Littman-Metcalf^{64,65}
es

$$\Delta \lambda = \frac{\sqrt{2\lambda^2}}{\pi L(\sin \theta_i - \sin \theta_d)}$$
(5.5)

donde L es el largo de la rejilla, θ_i el ángulo de incidencia sobre la rejilla y θ_d el ángulo difractado a primer orden por la rejilla.

Por lo tanto, la resolución para ángulo rasante ($\theta_i \approx \pi/2$)resulta

$$R = \frac{\lambda}{\Delta\lambda} \approx \frac{\pi}{\sqrt{2}}N\tag{5.6}$$

siendo N = L/d el número de líneas. Nótese que la resolución es 2.2 veces mayor que la resolución máxima de una rejilla debido a su tamaño finito

$$R = N|m| \tag{5.7}$$

donde m es el orden de difracción que aparece en la ecuación para la rejilla

$$m\lambda = d(\sin\theta_i + \theta_d) \tag{5.8}$$

La Fig. 5.5 muestra la cavidad para el láser de rodamina. En esta imagen no se muestra la configuración con etalón.

5.3.2. Láser de Rodamina

En los experimentos con sodio se excitar la líne
a D_2 , la cual tiene una longitud de onda en el vacío d
e λ_{D_2} =589.158nm. El pigmento que nos permite sintonizar esta transición es la rodamina 610 (
o rodamina B). Se diluyó a una concentración de $4\times10^{-4}M$. Gracias al sistema de flujo del pigmento, éste duraba dos meses, aproximadamente.

La Fig. 5.7 muestra una gráfica de cuatro de los espectros de sintonización del láser de pigmento de rodamina. Los espectros fueron tomados con un espectrómetro CCS100 de Thorlabs Inc®. A estos espectros se les ajusto una gaussiana en el software Origin®para obtener la longitud de onda y obtener ésta como cambia respecto a la sintonización con el micrómetro. Este cambio se muestra en la segunda gráfica. Los datos en negro son los valores que da el software del espectrómetro y los datos en rojo son los que se obtienen del ajuste realizado con Origin®.

Además, se midió la longitud de coherencia con un interferómetro de Michaelson. Se realizó el cálculo con y sin etalón intracavidad, respectivamente:



Figura 5.7: (a)Sintonización del láser de rodamina con ajuste gaussiano. Esta gráfica solo muestra cuatro espectros. (b) Variación de la longitud de onda con la sintonización.

$$L_{ce} = 17.27mm \qquad \qquad L_{se} = 13.72mm \tag{5.9}$$

lo que corresponde a los siguientes anchos de banda

$$\Delta \lambda_{ce} = 0.020nm \qquad \qquad \Delta \lambda_{se} = 0.025nm \tag{5.10}$$

5.3.3. Láser de Stilbina

En el caso del calcio, la longitud de onda de la transición a excitar es $\lambda_{Ca} = 422.67nm$ y el pigmento que nos permite sintonizarla es la stilbina 420. La configuración del láser de pigmento de stilbina es la misma que la de rodamina, pero utilizando en tercer armónico del *Nd*:*YAG* como bombeo.



Figura 5.8: (a)Sintonización del láser de stilbina con ajuste gaussiano. Esta gráfica solo muestra cuatro espectros. (b) Variación de la longitud de onda con la sintonización.

Se trabajó a una concentración de $4 \times 10^{-4}M$. Al igual que con la rodamina se tomaron varios espectros. Éstos se muestran en la primera gráfica de la Fig. 5.8, a los cuales también se les hizo un ajuste para comparar con el software del espectrómetro. En la segunda se encuentra la variación de la longitud de onda con respecto de la división del micrómetro para los datos del espectrómetro y los del ajuste.

También se midió la longitud de coherencia con y sin etalón intracavidad para este pigmento:

$$L_{ce} = 13.97mm$$
 $L_{se} = 12.70mm$ (5.11)

Estas medidas corresponden a los siguientes anchos de banda

$$\Delta \lambda_{ce} = 0.013 nm \qquad \qquad \Delta \lambda_{se} = 0.014 nm \tag{5.12}$$

5.4. Axicón y Haces Bessel

El axicón es una lente especializada, la cual tiene una de sus superficies cónica. Un axicón convierte un haz láser en una distribución de anillos. Cuando es un haz Gaussiano el que incide sobre el axicón, lo que resulta es haz Bessel-Gauss. Se había mencionado en el capítulo 4 que existen otras formas de generar haces Bessel, pero para propósitos de éste trabajo y trabajo posterior, se elije este método.

Se utilizó un axicón de 1" de diámetro y un ángulo de $\delta = 1^{\circ}$ (véase Fig. 5.1), sobre el cual incide el láser de pigmento para formar el haz Bessel. En la Fig 5.10 se muestran algunas imágenes de los perfiles transversales de un haz Bessel a distintas posiciones a lo largo del eje de propagación. Se utilizaron filtros para disminuir que no se sature la imagen y no dañar la CCD.

En la Fig. 5.9 se presentan los cortes transversales de intensidad a lo largo y a lo ancho de dos de las imágenes de la Fig. 5.8, la (a) y la (f). Y en la Fig. 5.11



Figura 5.9: Perfil de intensidad a (a)13.1cm a lo largo del eje x; (b)13.1cm a lo largo del eje y; (c)25-1cm a lo largo del eje x, y (d)25.1cm a lo largo del eje y.



Figura 5.10: Imágenes de haces Bessel tomadas a (a)10.1cm, (b)13.1cm, (c)18.2cm, (d)21.2cm, (e)23.0cm y (f)25.1cm

se muestra la gráfica de la variación del máximo de intensidad con respecto a la distancia a la que se encuentra el detector del axicón. Recordemos que



Figura 5.11: Variación de la intensidad respecto a la distancia sobre el eje de propagación.

la intensidad de un haz Gaussiano disminuye mientras aumenta la distancia de propagación (sección 4.2) debido a los efectos de difracción, mientras que la intensidad de los haces Bessel de orden cero oscila alrededor de su valor inicial hasta que llega a un punto en que decae abruptamente.¹⁸

En los experimentos realizados, el axicón se colocó después del láser de pigmento (veáse Fig 5.1) a $\sim 30cm$ del centro del horno que contiene al vapor atómico.

5.5. Horno para vapores atómicos

Los vapores atómicos de sodio y calcio se produjeron en un horno sellado al vacío (0.12 *Torr* presión mínima alcanzada con la bomba de vacío^{II}) como el que se muestra en la Fig. 5.12. Ahí se produjeron las condiciones necesarias de temperatura, presión e interacción con la luz indispensables para los experimentos.

El horno consiste de dos tubos de acero inoxidable. El primero de 2.54 *cm* de diámetro externo y una longitud de 26 *cm*. En un extremo se coloca una ventana de cuarzo sellada al vacío o'rings de cobre, y en el otro extremo se conecta al segundo tubo de acero. También tiene dos ventanas que son perpendiculares al eje axial del tubo para poder observar el haz mientras interactúa con el vapor.

El segundo tubo de acero inoxidable tiene otra ventana de cuarzo en un

[&]quot;Este orden de magnitud es considerado bajo vacío



Figura 5.12: Horno en el cuál se produjeron los vapores de sodio y calcio.

extremo y dos conexiones, una hacia un medidor de presión y la otra para la bomba de vacio y la entrada del gas buffer (Ar).

El gas buffer es usado como contenedor para los vapores de calcio y sodio. Este gas evita que los vapores se depositen en las ventanas.

Para calentar el horno se utilizó una cinta calefactora para el horno de sodio y *khantal* aislado con cuentas de cerámica como resistencia para el horno de calcio. Las resistencias se enrollaron en la parte central del horno largo.

Se ocuparon dos distintos sistemas de calefacción porque el vapor para cada sustancia se produce a distinta temperatura. La temperatura a la cual se observaron efectos no lineales —los cuales nos indican que la densidad de vapor requerida está cerca del valor al cual se presenta la emisión cónica— para sodio es ~ 350°C y para calcio a ~ 800°C. Esto es en el caso de nuestros sistemas, ya que la temperatura se midió con un termopar en la parte central del horno por fuera y no por dentro. En el apéndice A se presenta con detalle el método de preparación de los vapores atómicos.

Debido a las grandes temperaturas que se requieren para producir los vapores --en especial el de calcio-- se instaló un sistema de refrigeración

para evitar que los sellos de vacío se fundan y las ventanas de cuarzo se rompan. Esto también ayuda a que el vapor no se deposite en las ventanas con el gradiente de temperatura generado.

También se recubrió la parte caliente del horno con fibra de vidrio para evitar la disipación excesiva de calor.

5.6. Detección

El sistema de detección consiste en un espectrómetro CCS100⁶⁶ de Thorlabs Inc, una camara CCD⁶⁷ también de Thorlabs y una cámara profesional Nikon[®] D600.⁶⁸

El espectrómetro es compacto con un rango de longitudes de onda de 350 - 700nm, lo cuál es adecuado para ambos sistemas de vapores y pigmentos. Tiene una resolución de 10px/nm y es posible sincronizarlo con la salida del láser de bombeo. El espectrómetro se utilizó para obtener los espectros del láser de pigmento sintonizable (Sección 5.3.2 y 5.3.3) y así calibrar la sintonización. La resolución de este espectrómetro no es suficiente para resolver emisión cónica anómala, pero nos permite conocer la longitud de onda del láser con suficiente precisión y sirve de guía para iniciar los experimentos.

La CCD tiene un sensor a color y resolución de 1280×1024 pixeles. Esta fue utilizada para obtener el perfil del láser de pigmento y para caracterizar los haces Bessel (Sección 5.4). Normalmente se usaba en conjunto con filtros para no saturar la imagen y no dañar el sensor.

En cuanto a la cámara profesional, es una réflex digital HD de formato FX (encuadre completo). Tiene un sensor CMOS de 24.3 mega pixeles. Se utilizó una lente de 85 mm de distancia focal y apertura numérica de 11 para tomar las fotografías de la emisión cónica anómala que se presentan y analizan en el capítulo 6.

Capítulo 6

RESULTADOS EXPERIMENTALES

En este capítulo se presenta el análisis de los resultados de los experimentos de emisión cónica anómala en vapor de calcio con dos tipos de haces, Gaussianos y Bessel. Los experimentos con vapor de sodio no dieron resultados concluyentes, ni podían analizarse, por tanto no solo describe lo que se alcanzo a observar. Solamente se hacen un par conjeturas para explicar el por qué no se observó la emisión. El el siguiente capítulo se discutirán los resultados aquí presentados.

Con el fin de comparar el diámetro del anillo entre la emisión cónica producida por haces Gaussianos y la producida con haces Bessel, se tomaron nueve fotografías de la emisión cónica. Tres de éstas cuando la emisión fue producida con haces Gaussianos a desintonías, $\Delta\lambda_1 < \Delta\lambda_2 < \Delta\lambda_3$, y a temperaturas T_1, T_2 y T_3 . Las tres siguientes fotografías de la emisión se tomaron usando haces Bessel como láser de bombeo a las tres mismas desintonías pero a tres temperaturas ligeramente distintas, T_4, T_5 y T_6 .

Las últimas tres, también se tomaron utilizando haces Bessel —a las desintonías $\Delta \lambda_1 < \Delta \lambda_2 < \Delta \lambda_3$ y temperaturas ligeramente distintas, T_7, T_8, T_9 pero colocando el axicón apenas fuera del eje de propagación. Una de las razones por la cual tuvimos que alinear ligeramente fuera del eje de propagación para ver la emisión con el axicón es porque la punta de la lente está ligeramente fuera del centro.

Por otro lado, las temperaturas entre las fotografías son distintas por las fluctuaciones en el horno durante el tiempo en que se realizó el experimento y la toma de datos. Debido a que el ángulo del cono es función de la densidad de átomos y la densidad es función de la temperatura del horno, que es la variable que podemos manipular en el experimento, se procuró que las variaciones en la temperatura fueran mínimas durante los experimentos. Las variaciones máximas aquí reportadas fueron de $\Delta T = 4^{\circ}C$.

Con los resultados del apéndice A, una variación de $\Delta T = 4^{\circ}C$ en la temperatura del horno provoca una variación $\Delta \rho$ en la densidad de átomos

de calcio. Esta variación es suficiente para modificar notablemente el ángulo del cono, por lo que es importante un buen control en la temperatura.

A partir de las fotografías se midió el ángulo del cono para cada una de las desintonías a través de un software libre (Image J) y se obtuvieron los cortes transversales de intensidad a lo largo de las imágenes porque era la dirección donde se encontraba menos saturación y se podía elegir siempre el mismo pixel para todas las fotografías. La ventaja de elegir el mismo pixel para el análisis de todas las fotografías es gracias a que la cámara profesional estaba fija y el software tiene la función de elegir pixel a pixel. Al plano de la imagen (y de la página) lo llamaremos plano xy.

Los cortes transversales y la mediciones de los ángulos se hicieron sobre las fotografías originales, pero como las imágenes mostraban poco contraste, se separó cada foto en sus componentes RGB para analizarlas.

De las componentes RGB, el canal G (verde) presentó mejor contraste en todas las imágenes y, por esto, fueron utilizadas para obtener los datos que a continuación se presentan.

En el apéndice A se describe con más detalle el procedimiento utilizado para producir la emisión en vapor de Ca con ambos haces y la colección de datos.

6.1. Emisión cónica con haces Gaussianos

En esta sección se describe con más detalle el procedimiento general utilizado para calcular los ángulos de los anillos de las nueve fotografías tomadas. Por simplicidad solo se presenta el procedimiento para la primer fotografía con haces Gaussianos de la emisión cónica (véase Fig. 6.1), tomada a la desin-



Figura 6.1: Fotografías de la ECA con haces Bessel cuando el axicón se encontraba bien alineado. (a) Foto a una desintonía $\Delta\lambda_1$ y temperatura
 $T_4=802.9^\circ{\rm C}$



Figura 6.2: Perfil transversal de intensidad a lo largo de la vertical para $\Delta \lambda_1 = 421.30 nm$ y temperatura $T_1 = 803.5$.

tonía $\Delta \lambda_1 = 421.30 nm$ y temperatura $T_1 = 803.5$. El mismo método se utilizó para las imágenes restantes.^I

Como se mencionó antes, se tomó el perfil transversal de intensidad a lo largo de la fotografía con el software Image J. Se aseguró que el corte transversal en cada imagen fuera a lo largo del mismo pixel, es decir, la linea amarilla de la Fig. 6.1 esta sobre el mismo pixel en cada fotografía. El perfil transversal de intensidad de fotografía es la línea negra en la gráfica de la Fig. 6.2. En la mayoría de las fotografías los picos del anillo se ven saturados y por tanto, no es posible definir un máximo con certeza. Por esta razón se descompuso cada imagen en sus tres canales RGB. El ejemplo para la desintonía $\Delta \lambda_1 = 421.30 nm$ son las líneas roja, verde y azul en la Fig. 6.2.

Haciendo el análisis para todas las imágenes, el canal verde fue el que presentó mejor resolución en los picos del anillo y los resultados obtenidos con haces Gaussianos se presentan en la tabla 6.1. Las λ 's de excitación fueron calculadas con el ajuste mostrado en la sección 5.3.3 para el láser sintonizable de stilbina.

$\Delta\lambda$	λ de excitación	Desintonía	Ángulo del cono	Temperatura
(nm)	(nm)	(nm)	(mrad)	(°C)
$\Delta\lambda_1$	421.30	1.37	26.8	803.5
$\Delta\lambda_2$	421.32	1.35	30.4	806.3
$\Delta\lambda_3$	421.35	1.32	31.9	802.3

Tabla 6.1: Datos sobre ECA con haces Gaussianos

¹En el apéndice C se muestran las 9 fotografías



Figura 6.3: Fotografías de la ECA con haces Bessel cuando el axicón se encontraba bien alineado. (a) Foto a una desintonía $\Delta\lambda_1$ y temperatura $T_4=802.9^\circ\mathrm{C}$

$\Delta\lambda$	λ de excitación	Desintonía Ángulo del co		Temperatura
(nm)	(nm)	(nm)	(mrad)	(°C)
$\Delta \lambda_1$	421.30	1.37	-	803.5
$\Delta\lambda_2$	421.32	1.35	28.8	805.1
$\Delta\lambda_3$	421.35	1.32	_	802.1

Tabla 6.2: Datos sobre ECA con haces Bessel cuando el exicón está fuera del eje de propagación.

6.2. Emisión cónica con haces Bessel

En los experimentos con haces Bessel se tomaron dos series de fotografías: las primeras tres fotografías se tomaron con el axicón alineado con el eje de propagación del haz como se muestra en la Fig. 6.4 y las restantes colocando el axicón ligeramente fuera del eje de propagación tratando de mantener el axicón a la misma distancia del centro del horno para que el perfil no cambiara.

La razón por la cual se tomaron dos series de fotografías es que cuando el axicón estaba centrado, el anillo del cono no era claramente observable (véase Fig. 6.3 o apéndice C). Por esto, la última serie de tres fotografías se tomó con el axicón un poco fuera del eje de propagación del haz ya que el anillo sí era observable en estas circunstancias.

La Fig 6.4 es la fotografía de la emisión cónica con haces Bessel para $\Delta\lambda_2 = 421.32nm$ a $T_8 = 805.1^{\circ}C$ con el axicón ligeramente fuera del alineación. La razón por la cual se tuvo mover el axicón puede ser que la punta del axicón se encuentre fuera del centro de la lente. En el siguiente capítulo se discute con mayor detalle este suceso.

Nótese que el anillo sí es observable a pesar de que hay poco contraste entre el haz central y su reflexión y el anillo del cono. Se realizó el mismo análisis para medir el diámetro del anillo para las tres desintonías utilizando el canal verde. La Fig. 6.5 muestra la gráfica con los perfiles de intensidad. Nuevamente, la línea negra es el perfil de la fotografía original y las líneas roja, verde y azul son los perfiles de cada canal.



Figura 6.4: Emisión cónica anómala a una desintonía $\Delta \lambda_2$ y a una temperatura de $T_8 = 805.1^{\circ}C$. La doble imagen del spot central es producida porque el axicón estaba un poco fuera del eje de propagación.

De las tres fotografías de la emisión cónica con haces Bessel, con el axicón ligeramente fuera del centro, solo se obtuvo un dato sólido para comparar con los resultados de la sección 6.1, a pesar de que el análisis también se hizo con el canal verde de cada fotografía. La Tabla 6.2 contiene el resumen de los resultados de la ECA con haces Bessel cuando en axicón está ligeramente fuera del eje de propagación. Aparentemente, el anillo producido por un haz Bessel es menor que el de un haz Gaussiano a la misma desintonía y también más ancho.



Figura 6.5: Perfil transversal de intensidad a lo largo de la vertical para $\Delta \lambda_2 = 421.30 nm$ y temperatura $T_8 = 805.1$.



Figura 6.6: Gráficas de los cortes transversales para las desintonías (a) $\Delta\lambda_1$, (b) $\Delta\lambda_2$ y (c) $\Delta\lambda_3$. La longitud de onda mostrada en estos espectros fue calculada con el ajuste de la sección 5.3.3

6.3. Gaussianos vs. Bessel

La Fig. 6.6 muestra los perfiles transversales de intensidad de la emisión cónica con los dos tipos de haces para las tres desintonías. Es fácil ver como cambia el tamaño del ángulo con los cortes transversales a diferencia de con las fotografía, excepto para la desintonía $\Delta\lambda_3$, porque los picos del cono están más ensanchados. Estos cortes fuero hechos a lo largo, que sería el eje y, sobre las componentes verdes del las fotos originales.

Al menos, para $\Delta \lambda_2$ es sencillo ver des
de la gráfica en la Fig. 6.6 que el anillo producido por el Bessel a la misma des
intonía es menor. Para

6.4. Emisión cónica en vapor de sodio

En un principio, se propuso al vapor de sodio como medio no lineal porque se tiene mayor potencia en el segundo armónico del láser que bombea al láser de pigmento (el láser de bombeo es un Nd:YAG) que en el tercer armónico. A pesar de que se tenía la suficiente potencia, no se logró ver la emisión cónica. Sabemos que no fue por falta de potencia, ya que sí observamos otros fenómenos no lineales como filamentación y un anillo que, al parecer, no era emisión cónica porque su diámetro no cambiaba con la desintonía, ni con la densidad, además de que era tan tenue que se no se distinguía bien entre la fluorescencia.

Una desventaja, que es de gran importancia con el vapor de sodio, fue la falta de un espectrómetro con la resolución adecuada para asegurarnos que el ancho de banda del láser de pigmento de rodamina era menor a la separación entre las líneas D. No estábamos cien por ciento seguros de que resolvíamos bien las líneas D con la precisión que se necesitaba porque el ancho del espectro del anillo siempre es mucho mayor al del láser de bombeo y, lo más probable es que la línea D_1 estuviera absorbiendo la luz del cono.

Otra de las razones por la cual no pudimos observar la emisión en vapor de sodio puede ser contaminación del sodio por el aceite en el cual esta inmerso cuando esta empaquetado.

Capítulo 7

CONCLUSIONES

En este trabajo se realizó un estudio experimental que compara la propagación entre haces Bessel y haces Gaussianos en vapores atómicos bajo las condiciones a las cuales se produce el efecto no lineal de emisión cónica anómala.

El objetivo principal era comprobar si a una longitud de onda dada, el cambio en el vector de onda, generado por modificar el tipo de haz que se utilizaba como bombeo, producía un ángulo del anillo distinto en la emisión cónica.

En un principio, se propuso al vapor de sodio como medio no lineal porque se tiene mayor potencia en el segundo armónico del láser que bombea al láser de pigmento (el láser de bombeo es un Nd:YAG) que en el tercer armónico y así se tendría más energía disponible para generar el haz Bessel. A pesar de eso, no se logró ver la emisión.

En cuanto a los experimentos con vapor de calcio, se observó la emisión cónica con ambos haces, Gaussianos y Bessel. La emisión cónica en vapor de calcio utilizando haces Gaussianos, ya había sido observada con esta configuración.⁶ La importancia de este trabajo recae en haber producido la ECA al excitar el vapor atómico de calcio con un haz Bessel de orden cero bajo las mismas condiciones a las que se presenta la emisión con haces Gaussianos. Los experimentos mostraron que el ángulo del anillo de la ECA con haces Bessel de orden cero depende de la desintonía.

Además, dentro de la incertidumbre del experimento, encontramos que el ángulo del cono varía dependiendo del tipo de haz que excite al vapor. La tabla 7.1 muestra el resumen del análisis para las tres desintonías con los dos tipos de haces. De acuerdo con el dato para la desintonía $\Delta\lambda_2$, el ángulo del anillo producido por un haz Gaussiano es 1.6mrad mayor que el producido por un haz Bessel de orden cero. Sin embargo, de acuerdo a los cálculos del apéndice B, se debe mencionar que la variación del ángulo medido es del mismo orden de magnitud que el que podría producir la diferencia de

$\Delta\lambda$	Desintonía	θ_G	Temperatura	θ_B	Temperatura
	(nm)	(mrad)	(°C)	(mrad)	(°C)
$\Delta \lambda_1$	421.29	26.8	803.5	-	803.5
$\Delta\lambda_2$	421.32	30.4	806.3	28.8	805.1
$\Delta\lambda_3$	421.35	31.9	802.3	-	802.1

Tabla 7.1: ECA con haces Bessel y haces Gaussianos

temperaturas a la cuál se registraron los datos. Por tanto, se requieren más experimentos para poder decir con certeza que la emisión es producida por un proceso de mezclado de ondas como se esperaba en un principio.

A pesar de que los resultados no son concluyente, porque tanto la desintonía como el cambio en la densidad producen la misma diferencia entre los ángulos, es necesario realizar más experimentos con haces Bessel, debido a que no hay otro trabajo de ECA con haces Bessel contra el cual comparar.

Las sugerencias para trabajos posteriores sobre esta línea de investigación son:

- En primer lugar, realizar experimentos variando el ángulo de apertura del axicón. Es importante asegurarse que la posición del axicón a lo largo del eje de propagación no afecta al diámetro del anillo, porque si así fuera, es otra variable que debe considerarse. Variar la apertura del axicón nos permitiría confirmar si la ECA es un fenómeno sensible a la fase o no, porque el ángulo de apertura apertura del axicón está en términos del vector de onda del haz Bessel, como se describió en el capítulo 4.
- En segundo lugar, tener un espectrómetro con mejor resolución e implementar el método para medir los anillos. Esto daría una mejor precisión en las mediciones y también se podrían realizar una mayor cantidad de mediciones. El espectrómetro ayudaría más en el caso del sodio para observar a dónde se esta yendo la emisión cónica, porque lo más probable es que la otra línea la este absorbiendo. Para el calcio ayudaría para obtener espectros de emisión para analizarlos y compararlos con los espectros de la emisión cónica producidos haces Gaussianos.
- En tercer lugar, reducir el ancho de banda del láser de pigmento, ya sea con introduciendo otra rejilla en lugar del espejo sintonizador, utilizar un prisma en lugar del espejo fijo o ambas. Esto ayudaría para el caso del sodio, porque es un sistema de tres niveles. Sin embargo, lo primordial es una mejor resolución en el espectrómetro.
- Por último, un estudio teórico que introduzca los cambios apropiados

para describir el uso de haces Bessel como bombeo en los modelos ya existentes de emisión cónica para poder relacionar con lo que se observa experimentalmente.

Apéndice A

EMISIÓN CÓNICA ANÓMALA CON DOS TIPOS DE HACES

A continuación, se resume el protocolo utilizado en este trabajo para producir emisión cónica con dos tipos de haces, Gaussianos y Bessel y para la colección de datos.

- 1. Primero se coloca el tercer armónico del láser de *Nd:YAG* y se alinea para obtener la máxima potencia. Para la serie de experimentos del analizados en el capítulo 6, el máximo de energía obtenido fue de $\approx 6mJ$.
- 2. Redirijir y alinear el haz para bombear el láser de pigmento.
- 3. Alinear el láser de pigmento sintonizable, verificando con el espectrómetro que esté sintonizado en la transición atómica.
- 4. Una vez que el láser de pigmento está alineado, se alinea el horno y los detectores (espectrómetro y cámara profesional)
- 5. Después se aplica la técnica de preparación de vapores atómicos que se desarrolla en la sección A.1 de este apéndice. Mientras se realiza este procedimiento, el láser de bombeo puede apagarse.
- 6. Al terminar de preparar el horno se vuelve a encender el láser de bombeo y puede comenzarse a hacer experimentos.
- 7. Para los experimentos con dos tipos de haces primero se enfoca el láser de pigmento a una desintonía con una lente convexa en el centro de la parte caliente del horno y se toma la fotografía de la emisión.
- 8. Después, sin mover el tornillo sintonizador, esto es, a la misma longitud de onda, se retira la lente convexa y se pone la lente cónica para producir la emisión cónica con Bessel y se toma la fotografía.

- 9. Luego se cambia la desintonía las veces que sea necesarias o que puedan ser observadas con claridad y se repiten los anteriores dos pasos.
- 10. Por último se realiza el análisis de las fotografías tomadas para medir el ángulo de los anillos a las distintas desintonías y compararlos dependiendo el perfil del haz utilizado.

A.1. Preparación de los vapores atómicos

El arreglo implementado aquí para observar la emisión cónica anómala en los dos tipos de vapores es similar al de otros reportados^{3, 36, 39} en el capítulo 3. Sin embargo, la preparación de los vapores atómicos y la limpieza del horno que los contiene es una parte primordial que requiere mucho cuidado. Es por esto que en este apéndice se expone con detalle el método seguido aquí para realizar los experimentos de emisión cónica.

A.2. Vapor de sodio

El método utilizado para generar el vapor de sodio es importante porque es un elemento químico extremadamente reactivo. El sodio metálico utilizado era de la marca Sigma Aldrich, el cual viene en cubos y aislado del ambiente en aceite mineral.

Como se menciona en la sección 5.5, se debe calentar al rededor de 350 grados —considerando que el termopar está por fuera del horno— para producir el vapor de sodio. Por lo cual, se deben limpiar los cubos de sodio del aceite mineral en el que están aislados para que estos no contaminen el horno a la hora de calentar.

El procedimiento realizado para limpiar los cubos de sodio metálico y producir el vapor de sodio fue implementado con ayuda del Dr. César Guarin. Este consiste en:

- Preparar una salida del tanque de argón con una manguera y un embudo para generar una atmósfera libre de aire del medio ambiente.
- Limpiar el horno calentando mínimo hasta 500°C y haciendo vacío por al menos medio día. Antes de apagar el calentamiento se llenó dos veces el horno con argón para expulsar cualquier residuo.
- Una vez que está limpio el horno, se apaga la calefacción y se deja enfriar y se continúa haciendo vacío dejando que fluya argón.

- Ya que se enfrió el horno, se abre la ventana del horno más cercana al sistema de detección con el argón fluyendo y con la bomba de vacío cerrada. Esto es para crear una presión hacia afuera del horno con el Ar y que no entre aire al horno y no se contamine.
- Abierto ya el horno, rápidamente se crea la atmósfera de Ar con la manguera y el embudo y se colocan los cubos de Na en esa atmósfera sobre papel filtro. Es importante utilizar guantes, cubrebocas y gafas por protección y prevención.
- Se limpia el exceso de aceite mineral con el papel filtro lo mejor posible y se pasa a otro papel filtro limpio. En el segundo papel filtro, se utiliza ciclohexano para limpiar el aceite restante y nuevamente se elimina el exceso con el papel filtro. Además se utiliza acetona para eliminar el exceso de ciclohexano y siempre se vuelve a limpiar el cubo de Na con el papel filtro para que este no reaccione. Este paso se repite las veces que sea necesario o al menos dos veces. Este proceso debe ser rápido y no sacar al cubo de Na de la atmósfera de Ar.
- Para obtener sodio más puro, se cortan las capas más superficiales de los cubos con una navaja y se deja expuesto el sodio metálico que no ha estado en contacto directo con el aceite. Después, si los trozos son muy grandes se aplasta el sodio con rapidez, porque una vez que se quitaron las capas superficiales, el sodio comienza a calentarse.
- Después de tener el sodio lo más compacto posible, ya sea en cubos muy pequeños o aplanado, se coloca al centro del horno donde estará más caliente.
- Luego se cierra la ventana con un nuevo o'ring de cobre y se verifica que no haya fugas haciendo vacío, no sin antes purgar un par de veces con Ar.
- Por último, se calienta el horno nuevamente, pero ahora a no más de 250°C, haciendo vació y purgando las veces que sea necesario con Ar, para limpiar cualquier residuo de aceite, ciclohexano o acetona. Siempre verificando que no haya fugas de vacío.

Después de realizar este procedimiento, puede llenarse el horno a 10Torr de Ar y cerrarlo para mantener el sodio aislado y que sea utilizado después para realizar experimentos.

A.3. vapor de calcio

El caso del calcio es mucho más sencillo, ya que no es tan reactivo como el sodio. Se siguen los mismos pasos para cargar el horno con Ca, a diferencia de que éste no debe ser limpiado. El Ca sale directamente de su contenedor en forma de hojuelas y se introduce al horno que está con atmósfera de Ar. Aunque la atmósfera de Ar no es absolutamente necesaria. Se puede solo abrir el horno e introducir el Ca, pero después si debe limpiarse con calor y flujo de Ar.

Para limpiar el horno cargado de calcio se calentaba al menos a 600°C

Apéndice B

Densidad de vapor

La densidad de un vapor atómico está dada por

$$\rho = \frac{N}{V} \tag{B.1}$$

donde N es el número de partículas y V el volumen en que están contenidas.

Para propósitos de este trabajo el sistema utilizado puede ser modelado como un gas ideal, por lo tanto sigue la ecuación del gas ideal

$$PV = nRT \tag{B.2}$$

tal que n es el número de moles y R es la constante universal de los gases. También podemos escribir la ecuación del gas ideal en términos de el número de partículas y la constante de Boltzmann

$$PV = Nk_BT \tag{B.3}$$

Por lo tanto, la densidad puede reescribirse como

$$\rho = \frac{P}{RT} = \frac{P}{k_B T} \tag{B.4}$$

a partir de esta ecuación se puede calcular la densidad de un vapor atómico.

B.1. Densidad de vapor del calcio atómico

La ecuación (B.4) es una buena aproximación, sin embargo no es suficiente. Por tanto, se utilizo la calculadora de presiones de vapor del Instituto de Física Aplicada de la Universidad de Wien.⁶⁹ Con esta herramienta se obtuvieron los datos para graficar la densidad de vapor de calcio en términos de la temperatura como se muestra en las Figs. A1 y A2. Estos datos nos permiten calcular el cambio en la densidad producido por el cambio en la temperatura entre cada medición. Debido a que solo se obtuvieron un par de datos para comprar los ángulos de los anillos ala desintonía $\Delta\lambda_2$, solo se calcula el cambio en la densidad, $\Delta\rho$ producido por la diferencia de temperaturas, $\Delta T = 1.2^{\circ}C$, entre las fotografías. La diferencia de densidades para ese ΔT es de $\Delta\rho = 0.5 \times 10^{21} m^{-3}$. Por lo tanto, con los datos de Hernández-Pozos,⁶ este cambio en la densidad produce, aproximadamente un cambio en el anillo de $\Delta\theta = 1.6mrad$. Es importante recalcar que este cálculo es aproximado porque los valores de la variación del ángulo del anillo con la densidad⁶ no son del mismo orden de magnitud que los datos de este trabajo.



Figura B.1: Densidad de calcio en función de la temperatura en escala lineal



Figura B.2: Zoom a la gráfica de densidad de calcio anterior al
rededor del 800 a $900^\circ C$

Apéndice C

Fotografías de la ECA

En este apéndice se muestran las nueve fotografías de la emisión cónica con haces Gaussianos y Bessel que se utilizaron en este trabajo para comparar los diámetros entre los anillos que produce un haz Gaussiano contra los que produce un haz Bessel de orden cero a la misma longitud de onda

C.1. Emisión cónica anómala con haces Gaussianos



Figura C.1: Emisión cónica anómala a una desintoní
a $\Delta\lambda_1$ y a una temperatura de $T_1=803.5^{\circ}{\rm C}$



Figura C.2: Emisión cónica anómala a una desintoní
a $\Delta\lambda_2$ y a una temperatura de $T_2=806.3^\circ\mathrm{C}$



Figura C.3: Emisión cónica anómala a una desintoní
a $\Delta\lambda_3$ y a una temperatura de $T_3=802.3^\circ{\rm C}$

C.2. Emisión cónica anómala con haces Bessel

C.2.1. Axicón centrado



Figura C.4: ECA con haces Bessel con axicón centrado a una desintoní
a $\Delta\lambda_1$ y a una temperatura de $T_4=802.9^{\circ}{\rm C}$



Figura C.5: ECA con haces Bessel con axicón centrado a una desintonía $\Delta\lambda_2$ y a una temperatura de $T_4=804.5^\circ{\rm C}$



Figura C.6: ECA con haces Bessel con axicón centrado a una desintonía $\Delta\lambda_3$ y a una temperatura de $T_4=802.0^{\circ}{\rm C}$

C.2.2. Axicón ligeramente fuera del eje



Figura C.7: Emisión cónica anómala a una desintonía $\Delta\lambda_1$ y a una temperatura de $T_7=803.5^\circ$ C. La doble imagen del spot central es producida porque el axicón estaba un poco fuera del eje de propagación.



Figura C.8: Emisión cónica anómala a una desintonía $\Delta \lambda_3$ y a una temperatura de $T_9 = 802.1^{\circ}$ C. La doble imagen del spot central es producida porque el axicón estaba un poco fuera del eje de propagación.



Figura C.9: Emisión cónica anómala a una desintonía $\Delta \lambda_3$ y a una temperatura de $T_9 = 802.1^{\circ}$ C. La doble imagen del spot central es producida porque el axicón estaba un poco fuera del eje de propagación.

Bibliografía

- ¹ A. JAVAN and K. P., *IEEE Journal* **QE-2**, 470 (1966).
- ² D. GRISCHKOWSKY, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 866 (1970).
- ³ C. H. SKINNER and P. D. KLEIBER, *Phys. Rev. A* **21**, 151 (1980).
- ⁴ D. HARTER and R. BOYD, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **16**, 1126 (1980).
- ⁵ D. J. HARTER and R. W. BOYD, *Opt. Lett.* 7, 491 (1982).
- ⁶ J. L. HERNÁNDEZ-POZOS, Óptica no lineal y fenómenos cuasi-resonantes en sistemas gaseosos. Estudio de emisión cónica anómala en vapor de calcio, Master's thesis, Universidad Autónoma Metropolitana, Unidad Iztapalapa, 1993.
- ⁷ Y. SHEVY, M. ROSENBLUH, and H. FRIEDMANN, *Opt. Lett.* **11**, 85 (1986).
- ⁸ Y. SHEVY and M. ROSENBLUH, *Opt. Lett.* **12**, 257 (1987).
- ⁹ I. GOLUB, G. EREZ, and R. SHUKER, Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics **19**, L115 (1986).
- ¹⁰ L. You, J. Mostowski, J. Cooper, and R. Shuker, *Phys. Rev. A* **44**, R6998 (1991).
- ¹¹ M. LEBERRE-ROUSSEAU, E. RESSAYRE, and A. TALLET, *Optics Communications* **36**, 31 (1981).
- ¹² M. E. CRENSHAW and C. D. CANTRELL, *Opt. Lett.* **13**, 386 (1988).
- ¹³ M. E. CRENSHAW and C. D. CANTRELL, *Phys. Rev. A* **39**, 126 (1989).
- ¹⁴ J. F. VALLEY, G. KHITROVA, H. M. GIBBS, J. W. GRANTHAM, and X. JIAJIN, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2362 (1990).
- ¹⁵ M. Y. D.C. HANNA and D. COTTER, Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules, Springer, 1979.

- ¹⁶ R. W. BOYD, Nonlinear Optics, Academic Press, 2008.
- ¹⁷C. W. THIEL, Four-wave mixing and its applications, https://www.researchgate.net/publication/ 241258853_Four-Wave_Mixing_and_its_Applications, 2000, Accessed on 201 9-02-11.
- ¹⁸ J. DURNIN, *J. Opt. Soc. Am. A* **4**, 651 (1987).
- ¹⁹ T. WULLE and S. HERMINGHAUS, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1401 (1993).
- ²⁰ P. A. FRANKEN, A. E. HILL, C. W. PETERS, and G. WEINREICH, *Phys. Rev. Lett.* 7, 118 (1961).
- ²¹ A. YARIV, *Quantum Electronics*, Wiley, 1975.
- ²² J. D. JACKSON, *Classical Electrodynamics*, Wiley, 1975.
- ²³ D. L. MILLS, Nonlinear Optics, Springer, 1998.
- ²⁴ J. A. ARMSTRONG, N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING, and P. S. PERSHAN, *Phys. Rev.* 127, 1918 (1962).
- ²⁵ F. L. KIEN, DENSITY OPERATOR AND APPLICATIONS IN NONLINEAR AND QUANTUM OPTICS, http://sop.uohyd.ac.in/~sdg/ Resources/fam2.pdf, 2008, Accessed on 2019-11-8.
- ²⁶ S. F. T. J. J. SAKURAI, Modern Quantum Mechanics, Addison-Wesley, 1994.
- ²⁷ A. S. DAVYDOV, *Quantum Mechanics*, Pergamon Press, 1965.
- ²⁸ D. GRIFFITHS, Introduction to Quantum Mechanics, Prentice Hall, 1995.
- ²⁹ D. L. MILLS, *Physics of Atoms and Molecules*, Longman Scientific and Technical, 2003.
- ³⁰ J. STARK, Ann. Phys. 52, 15 (1917).
- ³¹ M. LEONE, A. PAOLETTI, and N. ROBOTTI, *Physics in Perspective* **6**, 271 (2004).
- ³² R. W. BOYD, M. G. RAYMER, P. NARUM, and D. J. HARTER, *Phys. Rev. A* 24, 411 (1981).
- ³³ D. J. HARTER, P. NARUM, M. G. RAYMER, and R. W. BOYD, *Phys. Rev. Lett.* **46**, 1192 (1981).
- ³⁴ A. C. TAM, *Phys. Rev. A* **19**, 1971 (1979).

- ³⁵ C. SKINNER, Optics Communications **41**, 255 (1982).
- ³⁶ M. FERNÁNDEZ-GUASTI, L. HERNÁNDEZ-POZOS, H. PONIATOWSKI E, and J. SÁNCHEZ LA, *Physical review. A* **49**, 613 (1994).
- ³⁷ Y. MEYER, Optics Communications **34**, 439 (1980).
- ³⁸ E. CHAUCHARD and Y. MEYER, *Optics Communications* **52**, 141–144 (1984).
- ³⁹ D. J. HARTER and R. W. BOYD, *Phys. Rev. A* 29, 739 (1984).
- ⁴⁰ G. BRECHIGNAC, P. CAHUZAC, and A. DEBARRE, *Optics Communications* 35, 87 (1980).
- ⁴¹ J. M. L. You, *Phys. Rev. A* **44** (1991).
- ⁴² A. SIEGMAN, *Lasers*, University Science Books, 1986.
- ⁴³ E. HECHT, *Óptica*, Addison Wesley, 2000.
- ⁴⁴ Y. MIZUYAMA, *Understanding the Paraxial Gaussian Beam Formula*, Comsol blog, 2016.
- ⁴⁵ D. McGloin and K. Dholakia, *Contemporary Physics* **46**, 15 (2005).
- ⁴⁶ O. Brzobohatý, T. Čižmár, and P. Zemánek, *Opt. Express* **16**, 12688 (2008).
- ⁴⁷ A. VASARA, J. TURUNEN, and A. T. FRIBERG, *J. Opt. Soc. Am. A* **6**, 1748 (1989).
- ⁴⁸ J. A. DAVIS, E. CARCOLE, and D. M. COTTRELL, *Appl. Opt.* **35**, 599 (1996).
- ⁴⁹ G. INDEBETOUW, *J. Opt. Soc. Am. A* **6**, 150 (1989).
- ⁵⁰ K. UEHARA and H. KIKUCHI, *Applied Physics B* **48**, 125 (1989).
- ⁵¹ J. TURUNEN, A. VASARA, and A. T. FRIBERG, *Appl. Opt.* **27**, 3959 (1988).
- ⁵² J. ARLT and K. DHOLAKIA, *Optics Communications* **177**, 297 (2000).
- ⁵³ J. H. McLeod, *J. Opt. Soc. Am.* **44**, 592 (1954).
- ⁵⁴ M. LEI and B. YAO, *Optics Communications* **239**, 367 (2004).
- ⁵⁵ J. ARLT, V. GARCES-CHAVEZ, W. SIBBETT, and K. DHOLAKIA, *Optics Com*munications **197**, 239 (2001).
- ⁵⁶ K. SHINOZAKI, C. QING XU, H. SASAKI, and T. KAMIJOH, *Optics Communications* **133**, 300 (1997).
- ⁵⁷ J. Arlt, K. Dholakia, L. Allen, and M. J. Padgett, *Phys. Rev. A* **60**, 2438 (1999).
- ⁵⁸ G. D. BOYD and D. KLEINMAN, *Journal of Applied Physics* **39**, 3597 (1968).
- ⁵⁹ CONTINUUM, Minilite® Series Compact, turn-key Nd:YAG laser.
- ⁶⁰ A. KRAMIDA, YU. RALCHENKO, J. READER, and AND NIST ASD TEAM, NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.6.1), [Online]. Available: https://physics.nist.gov/asd [2018, September 13]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., 2018.
- ⁶¹ D. A. STECK, revision 1.6, 14 October 2003 (2003).
- ⁶² A. KRAMIDA, YU. RALCHENKO, J. READER, and AND NIST ASD TEAM, NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.6.1), [Online]. Available: https://physics.nist.gov/asd [2019, September 13]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., 2018.
- ⁶³ W. DEMTRODER, Laser Spectroscopy, Springer, 2003.
- ⁶⁴ M. G. LITTMAN and H. J. METCALF, *Appl. Opt.* **17**, 2224 (1978).
- ⁶⁵ R. C. BUENO, Diseño y Construcción de un láser de pigmento, Master's thesis, Universidad Autónoma Metropolitana, Unidad Iztapalapa, 1986.
- ⁶⁶ I. THORLABS, 2019, Accessed: 2019-04-10.
- ⁶⁷ I. THORLABS, 2019, Accessed: 2019-04-10.
- ⁶⁸ І. Nikon, 2019, Accessed: 2019-04-10.
- ⁶⁹ M. SCHMID, Vapor pressure calculator, https://www.iap. tuwien.ac.at/www/surface/vapor_pressure, Accessed: 2019-02-15.