

✓ GENERACION DE SEGUNDO ARMONICO SINTONIZABLE
POR MEDIO DE UN LASER DE PIGMENTO
EN CRISTALES DE ADP

TESIS QUE PRESENTA EL
✓ *Fis. Raul Rangel Rojo*

PARA LA OBTENCION DEL GRADO DE MAESTRO EN CIENCIAS
JULIO 1989 ✓

✓ ASESOR: MANUEL FERNANDEZ GASTI

UNIVERSIDAD AUTONOMA METROPOLITANA - IZTAPALAPA

✓ DIVISION DE CIENCIAS BASICAS E INGENIERIA

AGRADECIMIENTOS.

Deseo expresar mi gratitud al Dr. Manuel Fernandez Guasti por hacer posible la realización del presente trabajo en el Laboratorio de Optica Cuántica de la UAM Iztapalapa, así como por su supervisión y sugerencias.

También quiero agradecer a todas las personas que con su trabajo en el Laboratorio contribuyeron directa o indirectamente al desarrollo de mi trabajo. Agradezco en particular al Sr. Carlos García Guerrero su valiosa ayuda en el aspecto técnico.

El Dr. Manuel Yamada S. del CICESE de Ensenada Baja California nos proporcionó amablemente los cristales de ADP, parte fundamental de este trabajo, razón por la cual le estoy especialmente agradecido.

Merecen también mi reconocimiento el Dr. Emmanuel Haro Poniatowski por la corrección y discusión de parte de esta tesis y al Dr. Eligio Orozco del IF-UNAM por las facilidades prestadas para el corte de los cristales de ADP.

Finalmente quiero agradecer al CONACYT por la beca que me otorgó para realizar mis estudios de Maestria.

INDICE

	<i>pagina</i>
Capitulo 1. Introducción.	1
1.1 Introducción.	1
1.2 Doblamiento de frecuencia.	2
1.3 Estructura de esta tesis.	4
Capitulo 2. Generación de segundo armónico.	6
2.1 Las ecuaciones de Maxwell en un medio no lineal.	6
2.2 Mezcla de tres ondas.	8
2.3 Generación de segundo armónico.	11
2.3.1 Condiciones de transferencia de energía.	12
2.3.2 La tolerancia angular.	17
2.4 Generación de segundo armónico con haces enfocados.	18
Capitulo 3. La susceptibilidad no lineal.	25
3.1 Modelo atómico clasico de la no linealidad, el oscilador anarmónico forzado.	26
3.2 Sistema cuántico de tres niveles.	30
3.2.1 Las ecuaciones de matriz de densidad.	30
3.2.2 Solución perturbativa.	33
Capitulo 4. Montaje experimental.	40
4.1 Láser de bombeo.	41
4.2 Láser de pigmento.	44
4.2.1 El medio activo.	44
4.2.2 La cavidad.	49
4.3 El cristal de ADP.	51
4.4 Detección.	55

	<i>pagina</i>
Capitulo 5. Generación de segundo armónico en un cristal de ADP.	
Experimentos.	57
5.1 Alineación del cristal.	57
5.2 La eficiencia de conversión.	58
5.2.1 Eficiencia experimental.	58
5.2.2 Eficiencia teórica.	59
5.2.2.1 Condiciones de enfoque.	59
5.2.2.2 Cálculo teórico.	61
5.2.3 Forma temporal del pulso.	63
5.3 Potencia de segundo armónico como función de la potencia de entrada.	64
5.4 Divergencia angular del segundo armónico.	64
5.5 Sintonía en frecuencia del segundo armónico.	67
 Capitulo 6. Conclusiones y perspectivas.	 71
 Apendice A. Definición de la susceptibilidad no lineal.	 75
 Apendice B. Coeficiente no lineal efectivo.	 79

Capítulo 1.

Introducción.

1.1 Introducción

Con el descubrimiento del láser en 1959, resultó posible producir haces intensos de luz monocromática coherente capaces de producir campos eléctricos de magnitud comparable a la de los campos electrostáticos que mantienen a los electrones unidos a los átomos (un valor típico para un láser pulsado es 10^5 V/cm). Esto permitió el descubrimiento de toda una gama de nuevos efectos en la interacción de la luz con la materia, como son la generación de armónicos, la amplificación paramétrica, el efecto Raman estimulado, la dispersión de Brillouin estimulada y la conjugación de fase, por nombrar los más importantes.

La generación de segundo armónico fue descubierta en 1960 por Franken, Hill, Peters y Wienreich [1], quienes al hacer incidir la radiación producida por un láser de rubí con una longitud de onda de 694.3 nm, enfocada por una lente sobre una placa de cuarzo, descubrieron que se producía luz de una longitud de onda de 347.2 nm, correspondiente exactamente a la mitad de la longitud de onda original (que equivale al doble de la frecuencia), a razón de un fotón azul por cada 10^8 fotones rojos. Este fenómeno se explicó como un proceso debido a la existencia de una polarización eléctrica que depende del cuadrado del campo eléctrico [1]. Posteriormente se descubrió una técnica para hacer que la eficiencia de producción del segundo armónico mejorara varios ordenes de magnitud respecto a los primeros resultados [2]. Estos avances, aunados a la invención de distintos láseres, permitió tener el segundo armónico de un cierto número de líneas láser.

A finales de los años sesenta y principios de los setentas, con el

desarrollo de los láseres de pigmento orgánico, que son láseres "sintonizables" en un amplio rango de longitudes de onda, se logró cubrir continuamente el espectro visible y parte del cercano ultravioleta [3,4]. Sin embargo, debido a limitaciones intrínsecas a los pigmentos, estos láseres no pueden funcionar por debajo de cierta longitud de onda (localizada en el cercano ultravioleta). La generación de segundo armónico, o doblamiento de frecuencia como también se le conoce, de la luz proveniente de los láseres de pigmento y el mezclado paramétrico de ondas (del que el segundo armónico es un caso particular) permitieron la obtención de fuentes de luz monocromática coherente e intensa sintonizables en el ultravioleta [5-8]. Actualmente existen equipos comerciales que producen el segundo armónico de un láser de pigmento, estos sistemas constituyen una herramienta fundamental en la espectroscopia de fluorescencia con excitación selectiva de alta resolución. Sin embargo, las aplicaciones del proceso de generación de segundo armónico se han diversificado, siendo la detección de pulsos ultracortos una de las más importantes tecnológicamente [9].

En esta tesis se presenta la obtención de una fuente monocromática intensa de luz ultravioleta sintonizable, mediante la generación de segundo armónico de un láser de pigmento orgánico en cristales de fosfato dihidrogenado de amonio (ADP). Se presenta también un estudio de algunas de las propiedades del fenómeno de generación de segundo armónico. Se utilizó un láser con el pigmento *Rodamina 6G* bombeado por un láser de nitrógeno molecular, ambos diseñados y construidos en la U.A.M. - Iztapalapa. Los cristales de ADP utilizados fueron cultivados en el C.I.C.E.S.E. de Ensenada Baja California, y nos fueron amablemente proporcionados por el Dr. Manuel Yamada.

1.2 Doblamiento de frecuencia.

La generación de segundo armónico es un proceso en el que a partir de la interacción entre el campo eléctrico producido por un láser, que oscila con frecuencia ω (en la región óptica) y un medio no lineal a través del cual se propaga, se produce luz que oscila con una frecuencia 2ω .

Se puede hacer una descripción fenomenológica de este proceso expresando a la polarización eléctrica P inducida en el medio como una serie en potencias del campo aplicado E ,

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \epsilon_0 \chi^{(4)} E^4 + \dots \quad (1.1)$$

El primer término, que contiene a la susceptibilidad lineal, describe las propiedades ópticas lineales familiares del índice de refracción. El segundo término, cuadrático en E , es el responsable de la generación de segundo armónico. En efecto, si suponemos que se propaga una onda monocromática de frecuencia ω , la cual se describe por:

$$E(r, t) = \frac{1}{2} [\mathcal{E}(r) e^{i\omega t} + \mathcal{E}^*(r) e^{-i\omega t}] \quad (1.2)$$

ésta producirá una polarización dada por:

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \frac{1}{4} [\mathcal{E}(r) e^{i\omega t} + \mathcal{E}^*(r) e^{-i\omega t}] [\mathcal{E}(r) e^{i\omega t} + \mathcal{E}^*(r) e^{-i\omega t}] \quad (1.3)$$

donde sólo hemos tomado en cuenta el término cuadrático en E .

Desarrollando el producto se obtiene que:

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \frac{1}{4} [\mathcal{E}^2(r) e^{i2\omega t} + \mathcal{E}^{*2}(r) e^{-i2\omega t} + 2\mathcal{E}\mathcal{E}^*] \quad (1.4)$$

considerando una amplitud \mathcal{E} real, entonces

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}^2(r) \frac{1}{4} [e^{i2\omega t} + e^{-i2\omega t} + 2] \quad (1.5)$$

es decir, la propagación del campo electromagnético induce la producción de una polarización constante (fenómeno conocido como rectificación óptica) y una polarización óptica que oscila con una frecuencia 2ω . Al

introducir la polarización dada por (1.5) en las ecuaciones de Maxwell, se obtiene que una parte del campo oscilará con frecuencia 2ω . Esta componente es la que constituye el segundo armónico.

La generación de segundo armónico y en general los procesos de orden cuadrático en el campo eléctrico, sólo se observan en medios anisotrópicos, por lo que casi siempre se usan cristales birrefringentes para producirlos. La razón de esto tiene que ver con argumentos de simetría muy generales como veremos más adelante.

1.3 Estructura de esta tesis

La estructura de la presente tesis es la siguiente: en el siguiente capítulo se exponen los aspectos teóricos relacionados con la generación de segundo armónico; en el capítulo 3 se explica el origen de la respuesta no lineal ante la propagación del campo electromagnético y se muestra un cálculo semi-clásico de la interacción de radiación con materia del cual se obtiene una expresión para la susceptibilidad a segundo orden en el campo, en términos de parámetros moleculares. En el capítulo 4 se describe el montaje experimental utilizado en los experimentos realizados y en el capítulo 5 se muestran los resultados obtenidos. Finalmente en el capítulo 6 se vierten las conclusiones del presente trabajo y se discuten las posibilidades de trabajo a futuro.

Referencias del capítulo 1.

- 1.- Franken P.A., A.E. Hill, C.W. Peters, G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* 7, 118 (1961).
- 2.- Maker P.D. et al, *Phys. Rev. Lett.* 8, 21 (1962).
- 3.- Sorokin P.P. y J.R. Lankard, *IBM J. Res. Develop.* 10, 162 (1966).
- 4.- Schäfer F.P., W. Schmidt, J. Volze, *Appl. Phys. Lett.* 9, 306 (1966).
- 5.- Bradley et al, *Appl. Phys. Lett.* 19, 172 (1971).
- 6.- Jennings D.A. y A.V. Varga, *J. Appl. Phys.* 42, 5171 (1971).
- 7.- Dunning F.B., E.D. Stokes y R.F. Stebbing, *Opt. Commun.* 6, 63 (1972).
- 8.- Kuhl J. y H. Spitschan, *Opt. Commun.* 382 (1972).
- 9.- Fork R.L. y F.A. Beisser, *Appl. Opt.* 17, 22 (1978).

Capítulo 2.

Generación de segundo armónico.

La generación de segundo armónico se inscribe dentro del fenómeno más general de la interacción de la radiación electromagnética con un medio no lineal. Esta interacción puede describirse a un nivel fenomenológico mediante las ecuaciones macroscópicas de Maxwell, complementadas con las relaciones constitutivas; en ellas se hace uso explícito de la respuesta no lineal del medio ante la propagación del campo. El origen de esta respuesta no lineal no puede explicarse dentro de este marco, para ello hay que recurrir a una descripción microscópica y estadística, como se verá en el capítulo 3 del presente trabajo.

Al resolver las ecuaciones de Maxwell se llega a una ecuación de onda diferencial parcial no lineal, que en general no tiene una solución analítica. El método usado para resolverla coincide con un esquema más general: se determinan los modos normales del problema linealizado (ondas planas de frecuencia distinta en este caso), se toman unos pocos de ellos (tres en este caso), se les dan amplitudes dependientes de la posición o del tiempo y se insertan en la ecuación de onda. Este proceso da como resultado un conjunto de ecuaciones diferenciales ordinarias no lineales acopladas para las amplitudes. El problema se reduce entonces a resolver este sistema de ecuaciones.

2.1 La ecuación de onda en un medio no lineal.

Para estudiar la propagación del campo electromagnético en un medio no lineal usemos las ecuaciones de Maxwell, en el sistema MKS de unidades, para un medio sin cargas ni corrientes libres:

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad (2.1a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.1b)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = - \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.1c)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (2.1d)$$

donde \mathbf{E} y \mathbf{D} son los vectores de campo eléctrico y desplazamiento eléctrico respectivamente; \mathbf{H} y \mathbf{B} son el campo magnético y la inducción magnética. Las ecuaciones de Maxwell no forman un conjunto completo, necesitamos añadir información acerca de la respuesta del medio material ante la propagación del campo electromagnético. Esta información se introduce en la forma de relaciones entre los campos y los desplazamientos, llamadas por esto ecuaciones constitutivas, que ignorando los efectos de la magnetización del medio podemos escribir en forma general como:

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (2.2)$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} \quad (2.3)$$

donde ϵ_0 es la permitividad del vacío, \mathbf{P} la polarización eléctrica del medio y μ_0 es la permeabilidad del vacío. Escribamos a la polarización como la suma de una parte lineal y otra no lineal:

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi_L \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} \quad (2.4)$$

donde χ_L es la susceptibilidad eléctrica lineal, que para un medio arbitrario es un tensor de segundo orden y \mathbf{P}_{NL} es la parte no lineal de la polarización, cuyo origen y naturaleza se explicarán más adelante.

Resolvamos el sistema de ecuaciones (2.1-2.3) para el campo eléctrico de la siguiente manera: tomemos el rotacional de (2.1c), en el lado derecho de la ecuación resultante eliminemos \mathbf{B} usando la relación (2.3) y sustituyendo el rotacional de \mathbf{H} de (2.1d), llegando así a:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} \quad (2.5)$$

Para simplificar el lado izquierdo usamos primero la identidad vectorial $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E}$. Sustituyendo la relación constitutiva (2.2) y la expresión (2.4) en la primera ecuación de Maxwell (2.1a) y considerando que el medio es homogéneo obtenemos

$$\epsilon_0 (1 + \chi_L) \nabla \cdot \mathbf{E} + \nabla \cdot \mathbf{P}_{NL} = 0, \quad (2.6)$$

si la polarización no lineal es pequeña, de manera que $\nabla \cdot \mathbf{P}_{NL} \cong 0$ entonces podemos aproximar $\nabla \cdot \mathbf{E} \cong 0$ y la ecuación (2.5) se convierte en:

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} \quad (2.7)$$

Usando otra vez las expresiones (2.2) y (2.4) para eliminar a \mathbf{D} de la ecuación anterior, obtenemos la ecuación de onda en un medio no lineal:

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \mu_0 \epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \quad (2.8)$$

donde $\epsilon_r \cong 1 + \chi_L$ es la permitividad relativa del medio.

2.2 Mezcla de tres ondas.

La polarización no lineal puede escribirse como una serie en potencias del campo eléctrico

$$\mathbf{P}_{NL} \cong \epsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} : \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots \quad (2.9)$$

la cual puede obtenerse a partir de un desarrollo de Taylor del hamiltoniano que describe la interacción de un electrón ligado a un átomo o molécula con el campo [1]. En la ecuación anterior $\chi^{(n)}$ es la susceptibilidad no lineal a orden n en el campo, la cual es un tensor de orden $(n+1)$ determinado por las propiedades del medio. En el apéndice A se

presenta una definición más precisa del tensor $\chi^{(2)}$. Consideremos ahora las condiciones de simetría necesarias para la existencia de los diversos términos no lineales. Para esto veamos que sucede si se aplica un campo eléctrico $+E$ a un medio, la polarización resultante es, dejando de lado el carácter tensorial de las susceptibilidades:

$$P_{NL}^{(+)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \epsilon_0 \chi^{(4)} E^4 + \dots \quad (2.10)$$

Si ahora se invierte el campo, es decir si se aplica un campo $-E$ al medio, la polarización producida será ahora,

$$P_{NL}^{(-)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 - \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \epsilon_0 \chi^{(4)} E^4 + \dots \quad (2.11)$$

Si el medio es centrosimétrico, es decir su estructura es simétrica ante inversiones espaciales, la dirección de P_{NL} deberá invertirse y su magnitud deberá conservarse ante el cambio de signo de el campo aplicado, es decir $P_{NL}^{(+)} = -P_{NL}^{(-)}$ y esto sólo sucede si $\chi^{(2)} = \chi^{(4)} = \dots = \chi^{(2n)} = 0$.

Este resultado nos dice que para medios centrosimétricos, la polarización no contiene los términos de orden par en los campos, pero para medios no centrosimétricos y por tanto anisotrópicos existirán todos los términos. En particular, los fenómenos resultantes de una polarización cuadrática en el campo, sólo se observarán en medios anisotrópicos.

Al escribir la forma explícita de la polarización (2.9) en la ecuación de onda no lineal (2.8), vemos que resulta una ecuación diferencial parcial no lineal para E , que resolveremos para un caso particular en el siguiente párrafo.

Queremos describir el mezclado paramétrico de ondas, en el cual dos ondas de frecuencias en general distintas coinciden en un medio, generando una tercera onda que oscila a una frecuencia igual a la suma de las otras dos, efecto que proviene de la existencia de la polarización no lineal

cuadrática en el campo eléctrico. En el mezclado de ondas se producen además ondas que oscilan a una frecuencia igual a la diferencia de las incidentes, al doble de cada una de ellas, etc., que por el momento no tomaremos en cuenta. Por simplicidad supondremos que los campos se comportan como ondas planas, de manera que estos sólo dependerán espacialmente de la dirección de propagación, la cual tomaremos como la coordenada z .

Consideremos entonces que se propagan tres campos con frecuencias ω_1 , ω_2 y ω_3 con la siguiente forma

$$E_j(z, t) = [\mathcal{E}_j(z) e^{i(k_j z - \omega_j t)} + \text{c.c.}] / 2 \quad (2.12)$$

donde c.c. denota complejo conjugado y $j=1,2,3$ etiqueta las diferentes frecuencias, el campo total será la suma de ellos,

$$E = E_1(z, t) + E_2(z, t) + E_3(z, t) \quad (2.13)$$

Usaremos también la aproximación de envolventes suaves, considerando que las amplitudes de los campos \mathcal{E}_j varían suavemente, de manera que $\frac{d^2 \mathcal{E}_j}{dz^2} \ll k_j \frac{d \mathcal{E}_j}{dz}$, donde k_j es la magnitud del vector de onda del campo E_j .

Introduciendo estas expresiones en la ec. (2.8) obtenemos:

$$\sum_{j=1}^3 ik_j e^{i(k_j z - \omega_j t)} \frac{d \mathcal{E}_j}{dz} + \text{c.c.} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \quad (2.14)$$

Examinemos ahora el lado derecho de esta ecuación; la polarización no lineal actúa como una fuente para el campo E_j , al cual transfiere energía a una razón dada por [2]:

$$(\nabla \cdot \mathbf{S})_{NL} = \frac{1}{2} (\mathbf{E} + \mathbf{E}^*) \cdot \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial t} (P_{NL} + P_{NL}^*) \quad (2.15)$$

donde \mathbf{S} es el vector de Poynting, definido por $\mathbf{S} \equiv \mathbf{E} \times \mathbf{H}$. Sólo la parte de la polarización no lineal que varía en el tiempo con la misma frecuencia que alguno de los campos involucrados contribuye a modificar la amplitud

de ese campo, ya que el promedio en el tiempo de la razón de transferencia de energía $\langle \nabla \cdot \mathbf{S} \rangle_T$ sólo será significativo para la parte que oscile con la frecuencia dada. Así, si estamos interesados en describir al campo \mathcal{E}_3 oscilando con frecuencia $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, sólo consideraremos los términos que oscilen con esta frecuencia en la ec. (2.14). Haciendo esto obtenemos:

$$\frac{d \mathcal{E}_3}{dz} = i \omega_3 \frac{1}{2} \left[\frac{\mu_0}{\epsilon_0 \epsilon_r} \right]^{1/2} d : \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \exp[i(k_1 + k_2 - k_3)z] \quad (2.16)$$

donde usamos $k_3 = k_1 + k_2$; de manera similar:

$$\frac{d \mathcal{E}_1}{dz} = i \omega_1 \frac{1}{2} \left[\frac{\mu_0}{\epsilon_0 \epsilon_r} \right]^{1/2} d : \mathcal{E}_3 \mathcal{E}_2^* \exp[i(k_3 - k_1 - k_2)z] \quad (2.17)$$

y

$$\frac{d \mathcal{E}_2^*}{dz} = i \omega_2 \frac{1}{2} \left[\frac{\mu_0}{\epsilon_0 \epsilon_r} \right]^{1/2} d : \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* \exp[i(k_1 - k_3 + k_2)z] \quad (2.18)$$

En las expresiones anteriores hemos usado el tensor d definido por:

$$d \equiv \epsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) \quad (2.19)$$

de uso más frecuente en la literatura.

2.3 Generación de segundo armónico.

El sistema de ecuaciones (2.16-18) describe la evolución de las envolventes de los campos eléctricos en el caso más general de mezclado de tres ondas. La generación de segundo armónico, la cual estamos interesados en describir, se obtiene como un caso particular cuando hacemos $\omega_1 = \omega_2 = \omega$, $\mathcal{E}_1 = \mathcal{E}_2$ y $\omega_3 = 2\omega$. Con esto el sistema de ecuaciones se reduce a sólo dos, para resolverlo introduzcamos la aproximación de que la eficiencia de conversión de radiación con frecuencia ω_1 en radiación con frecuencia ω_3 es muy pequeña, de manera que $\frac{d \mathcal{E}_1}{dz} \ll 1$ y podamos considerar $\mathcal{E}_1 = \text{cte}$. La ecuación (2.16) puede entonces integrarse directamente, usando para ello la condición inicial $\mathcal{E}_3(z=0) = 0$ (inicialmente no hay campo en el segundo armónico):

$$\mathcal{E}_3(L) = i\omega \frac{1}{2} \left[\frac{\mu_0}{\epsilon_0 \epsilon_r} \right]^{1/2} d : \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_1 \frac{e^{i\Delta k z} - 1}{i\Delta k} \quad (2.20)$$

donde L es el espesor del medio no lineal y Δk es la magnitud del vector Δk definido por:

$$\Delta k \equiv 2k_1 - k_3 \quad (2.21)$$

que no es otra cosa que el desfazamiento espacial del vector de onda resultante. La potencia de salida para el segundo armónico es proporcional al cuadrado de la amplitud \mathcal{E}_3 ; tomando la razón de esta potencia con la potencia de entrada (proporcional a \mathcal{E}_1^2) se obtiene la eficiencia de conversión:

$$\frac{P(2\omega)}{P(\omega)} = 2 \left[\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right]^{3/2} \frac{\omega^2 L^2}{n(2\omega) [n(\omega)]^2} d_{ef}^2 \left(\frac{P(\omega)}{\text{Area}} \right) \frac{\text{sen}^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \quad (2.22)$$

donde hemos reescrito a la permitividad relativa en términos del índice de refracción n , $\epsilon_r = n^2$, y hemos introducido el coeficiente no lineal efectivo d_{ef} , el cual toma en cuenta la geometría del cristal y las polarizaciones de los campos involucrados. En el apéndice B se presenta una derivación de este coeficiente.

2.3.1 Condiciones de transferencia de energía.

En la figura 2.1 se muestra la eficiencia de conversión al segundo armónico como función del desfazamiento espacial Δk ; resulta claro que la mayor eficiencia posible en la generación de segundo armónico se da cuando $\Delta k=0$, es decir, cuando

$$k(2\omega) = 2k(\omega) \quad (2.23)$$

Para ver que significa esta condición, consideremos primero que el desfazamiento espacial es diferente de cero, en este caso la onda armónica generada en el plano z_1 no estará en general en fase con la onda generada en otro plano z_2 con la cual interferirá al propagarse hasta ese plano

(ver figura 2.2). Esta interferencia está descrita por el factor $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$ en la ecuación (2.22) para la eficiencia de conversión. Así, al tener $\Delta k=0$ las ondas generadas a 2ω en dos planos z_1 y z_2 cualesquiera están en fase y por tanto su interferencia es constructiva, por esta razón a la condición (2.23) se le conoce como condición de acoplamiento de fases.

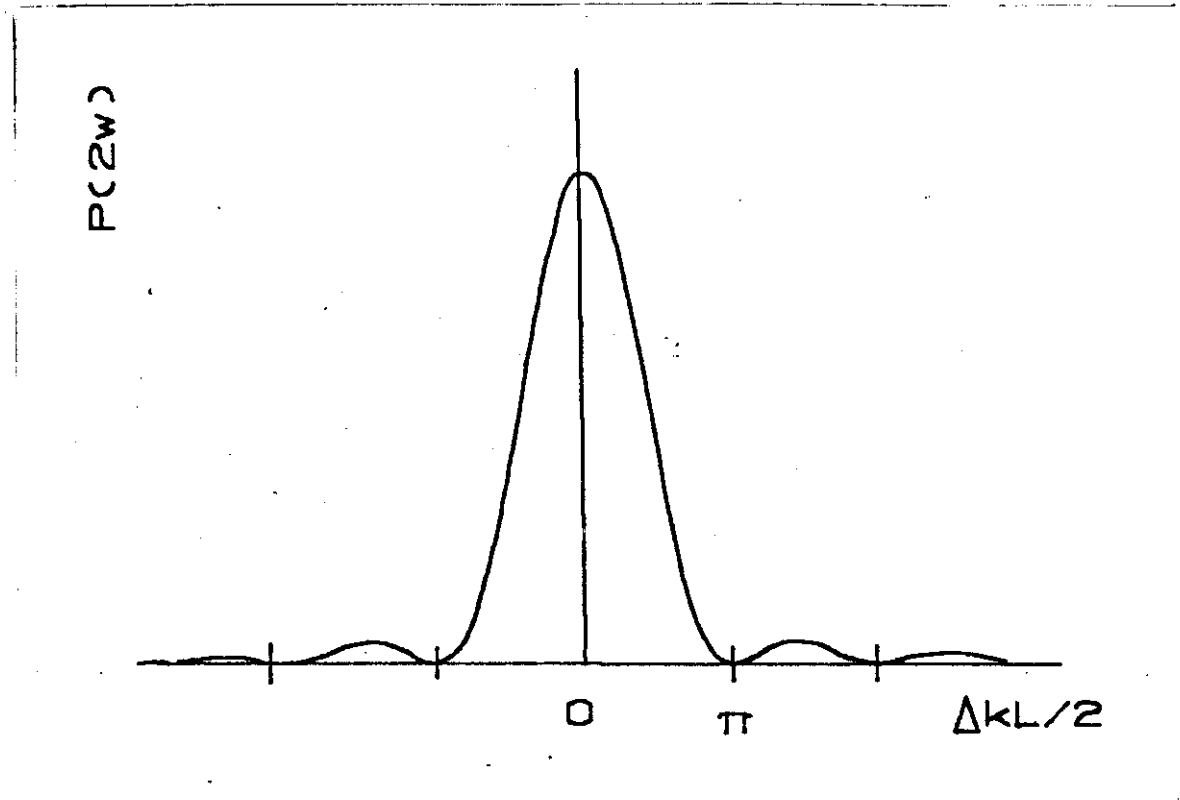


Figura 2.1
Potencia de segundo armónico como función de $\Delta kL/2$

Reescribamos la condición de acoplamiento de fases en términos de cantidades más accesibles experimentalmente. Recordando que

$$k(2\omega) = \omega \sqrt{\mu_0 \epsilon_0} n(\omega) \quad (2.24)$$

la condición de acoplamiento de fases (2.23) es entonces:

$$n(2\omega) = n(\omega) \quad (2.25)$$

Es decir, las ondas con frecuencia ω y 2ω deben viajar con la misma velocidad en el medio no lineal para poder tener la máxima eficiencia posible de generación de segundo armónico, de aquí que a esta condición

también se le conozca como de acoplamiento de velocidades.

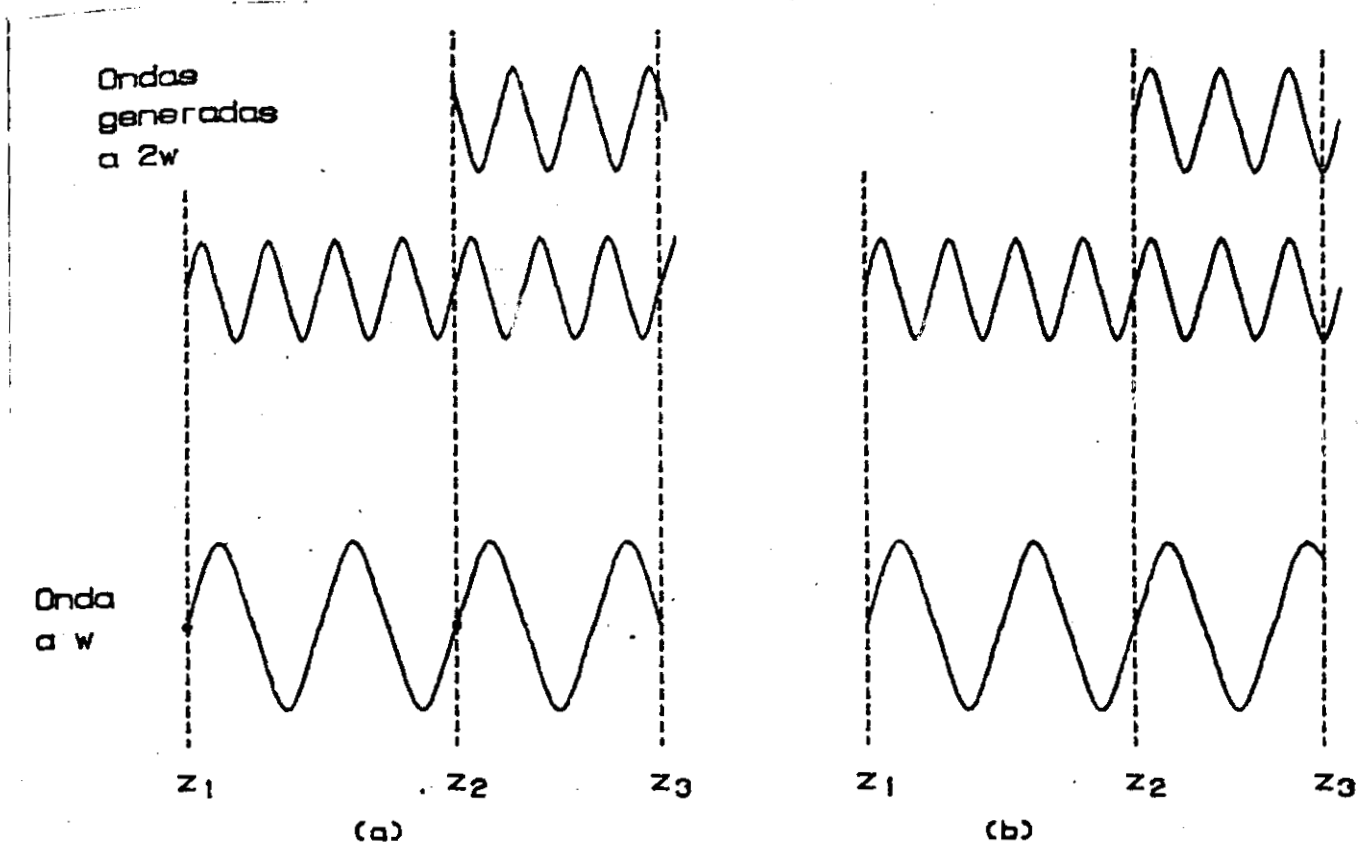


Figura 2.2

Condición de acoplamiento de fases. En (a) las ondas generadas en diferentes planos no están en fase cuando no se cumple (2.23), la intensidad resultante es pequeña. En (b) las ondas sí están en fase y la intensidad producida es alta.

Las técnicas para lograr cumplir esta condición aprovechan la birrefringencia natural que presentan los cristales anisotrópicos.

En los cristales anisotrópicos la dirección de propagación del campo eléctrico (representada por el vector k) y la dirección en que se propaga la energía (representada por el vector de Poynting S) no coinciden. Como consecuencia de esto al entrar al medio un haz luminoso, éste se divide en dos haces que "ven" al medio con dos índices de refracción diferentes y con polarizaciones mutuamente ortogonales. Estos índices son llamados de haz ordinario n_o y de haz extraordinario n_e , el cual es función de la dirección de propagación. Consideraremos el caso de los cristales uniaxiales, en los que sólo existe una dirección en la que se observa un

sólo haz, independientemente del estado de polarización de la luz, a la que llamamos eje óptico. Una subclase de estos, son los cristales uniaxiales negativos, en los que el índice de refracción extraordinario es siempre menor que el ordinario [3].

Así, aunque lejos de resonancia cada índice de refracción por separado sea función monótona de la frecuencia, escogiendo por ejemplo que el haz fundamental con frecuencia ω sea ordinario y el armónico con frecuencia 2ω sea extraordinario, podemos en principio cumplir la condición de acoplamiento de fase.

Para un cristal uniaxial, el índice de refracción extraordinario $n_e(\theta)$ depende de la dirección de propagación, determinada por el ángulo θ medido con respecto al eje óptico de la siguiente manera [3]:

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2\theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2} \quad (2.26)$$

donde n_o es el índice de refracción ordinario y n_e es el índice de refracción extraordinario que se mide a 90° con respecto al eje óptico (figura 2.3), siendo ambos función de la frecuencia.

La condición de acoplamiento de fases (2.25) se puede escribir como:

$$n_e(\theta_m, 2\omega) = n_o(\omega) \quad (2.27)$$

Es decir, existe una dirección específica θ_m tal que si proyectamos un haz a la frecuencia fundamental en esa dirección (con la polarización adecuada para que entre al cristal como un haz ordinario), el segundo armónico saldrá como un haz extraordinario en la misma dirección y la eficiencia de conversión será máxima.

Para encontrar el ángulo θ_m , hagamos uso de la condición (2.27) en la ecuación (2.26):

$$\frac{1}{n_o^2(\omega)} = \frac{\cos^2\theta_m}{n_o^2(2\omega)} + \frac{\sin^2\theta_m}{n_e^2(2\omega)} \quad (2.28)$$

que podemos resolver para el ángulo θ_m , llegando a:

$$\theta_m = \text{sen}^{-1} \left[\frac{n_e^{-2}(\omega) - n_o^{-2}(2\omega)}{n_e^{-2}(\omega) - n_o^{-2}(\omega)} \right] \quad (2.29)$$

Este es el resultado más importante del desarrollo teórico, ya que nos dice cual es la dirección en que podemos optimizar la generación de segundo armónico.

De este resultado se desprende también una restricción importante sobre el rango de longitudes de onda en que podemos obtener segundo armónico en forma eficiente, pues para que el ángulo θ_m éste bien definido se debe cumplir:

$$n_e(2\omega) < n_o(\omega) \quad (2.30)$$

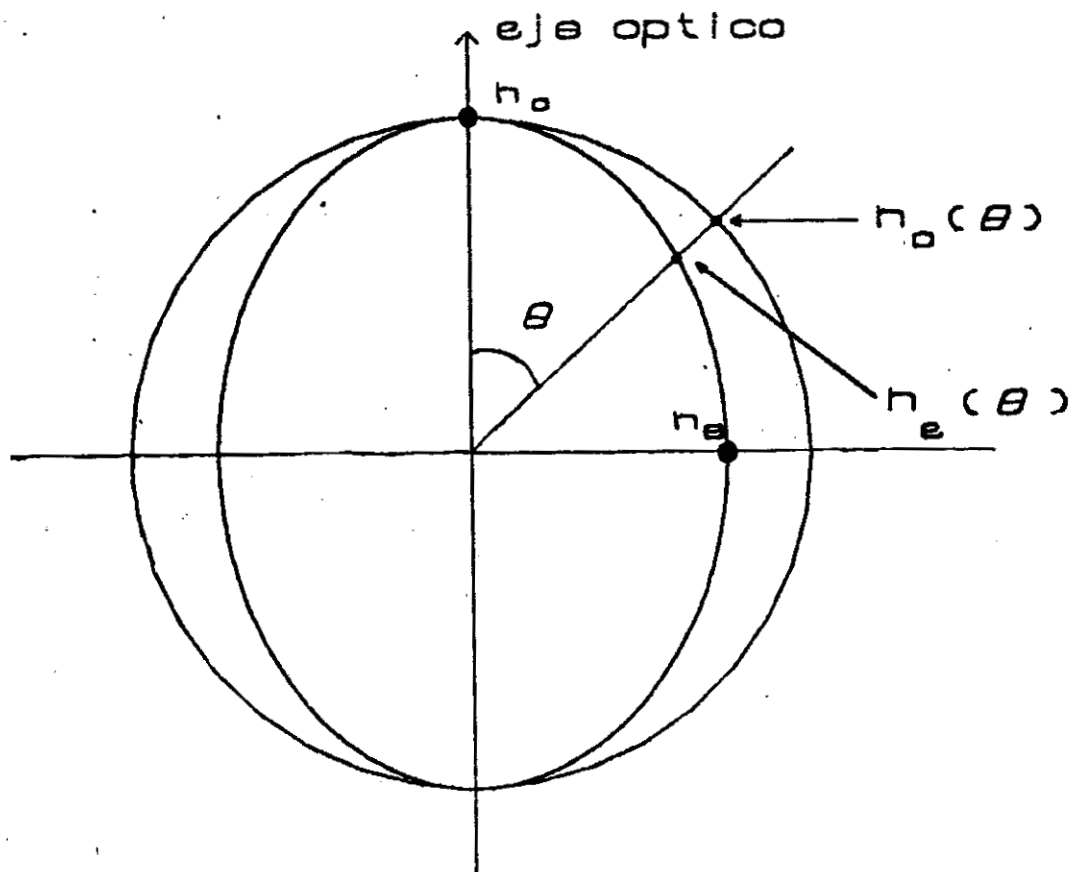


Figura 2.3
Índices de refracción ordinario y extraordinario como función de la dirección de propagación

2.3.2 La tolerancia angular.

Al tener una dirección de propagación diferente a θ_m dada por (2.29), la potencia de segundo armónico disminuirá por el factor $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$ respecto a su valor máximo, como muestra la ecuación (2.22). Para calcular esta disminución en términos del ángulo de propagación θ , cercano a θ_m , necesitamos la dependencia explícita de Δk con θ , manteniendo L fija. Para desviaciones pequeñas respecto a la dirección de acoplamiento de fase podemos escribir a Δk como un desarrollo de Taylor alrededor de θ_m :

$$\Delta k \approx \left. \frac{d \Delta k}{d\theta} \right|_{\theta_m} (\theta_m - \theta) + \dots \quad (2.31)$$

como $\Delta k = 2k(\omega) - k(2\omega)$ y

$$k(\omega) = \frac{\omega}{c} n_o(\omega) \quad (2.32a)$$

$$k(2\omega) = \frac{2\omega}{c} n_e(\theta, 2\omega) \quad (2.32b)$$

con la dependencia angular de n_e dada por (2.25), entonces

$$\frac{d \Delta k}{d\theta} = - \frac{2\omega}{c} \frac{d}{d\theta} n_e(\theta, 2\omega) \quad (2.33)$$

y por tanto

$$\Delta k \approx - \frac{\omega}{c} n_o^3(\omega) [n_e^{-2}(2\omega) - n_o^{-2}(2\omega)] \text{sen} 2\theta_m (\theta_m - \theta) \quad (2.34)$$

Definamos la tolerancia angular $\delta\theta$ como el intervalo en que la potencia pasa de su valor máximo a su valor mínimo (ver figura 2.1), el cual ocurre cuando $\Delta k = 2\pi/L$. De esta forma, la tolerancia estará entonces dada por:

$$\delta\theta \approx \frac{\lambda}{L} \frac{(n_o(\omega))^{-3}}{[(n_e(2\omega))^{-2} - (n_o(2\omega))^{-2}] \text{sen}(2\theta_m)} \quad (2.35)$$

La tolerancia angular así definida es un buen parámetro para especificar el intervalo en que se pueden obtener intensidades apreciables de segundo armónico.

A la técnica hasta aquí descrita se le conoce como de acoplamiento por ángulo tipo I. Vale la pena señalar que existen otras técnicas para lograr el acoplamiento de fase.

En el acoplamiento por ángulo tipo II, el haz incidente se divide dentro del cristal en un haz ordinario y otro extraordinario, de igual amplitud ambos y el segundo armónico sale como un haz extraordinario, teniéndose ahora un ángulo óptimo de conversión diferente al de tipo I y una mayor tolerancia angular. El acoplamiento tipo I requiere como fuente un haz con polarización lineal, mientras que el tipo II puede realizarse con una fuente polarizada o no. En algunos cristales en los que se puede controlar la birrefringencia por medio de la temperatura, es posible incidir a 90° respecto al eje óptico y cumplir la condición de acoplamiento de fases a una temperatura específica. A este método se le conoce como acoplamiento por temperatura o acoplamiento a 90° .

2.4 Generación de segundo armónico con haces enfocados.

El tratamiento hecho en la sección 2.2 está basado en la suposición de que el haz fundamental se comporta como una onda plana monocromática. En la práctica, todas las fuentes de luz utilizadas se desvían en mayor o menor grado de este patrón. En particular, muchos láseres se propagan en la forma de haces gaussianos [4], lo que sugiere que un cálculo más realista debe tener en cuenta este aspecto. Una explicación heurística de la generación de segundo armónico en estas condiciones es la siguiente:

La ecuación (2.22) sugiere que disminuir el área sobre la que incide el haz aumenta la eficiencia de conversión al segundo armónico. Esto se logra enfocando el haz por medio de una lente, lo que resulta en un haz gaussiano con una cintura w_0 y un rango de Rayleigh z_0 , como se muestra en la figura 2.4. Si la longitud del cristal es muy pequeña respecto a z_0 , el

área del haz permanece aproximadamente constante a lo largo del cristal, el vector de onda permanece también aproximadamente constante para cada parte del haz y el resultado (2.22) para ondas planas continúa siendo válido. Al aumentar la longitud del cristal o de manera equivalente usar una lente de distancia focal menor esta aproximación deja de ser válida. Por un lado, la sección transversal del haz dentro del cristal es ahora diferente para diferentes planos en profundidad, por lo que la contribución de cada uno de ellos será diferente. Por otro lado habrá porciones del haz cuyos vectores de onda no cumplan la condición de acoplamiento de fase, por lo que dichas porciones no contribuirán significativamente a la producción de segundo armónico.

Existe entonces una competencia entre el aumento de eficiencia por el aumento en la densidad de energía producido por la disminución del área y la disminución de eficiencia provocada por la divergencia del haz.

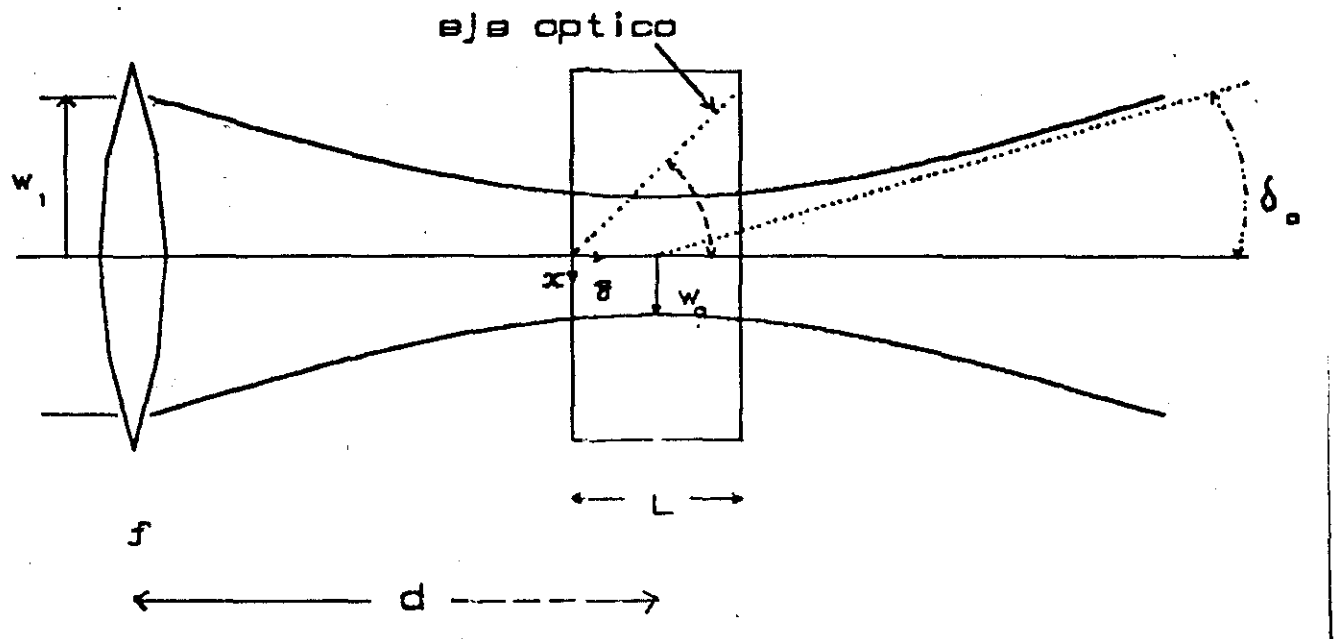


Figura 2.4
 Parámetros involucrados en la generación de segundo

completamente correcta necesitamos recurrir a la mecánica cuántica.

3.2 Un sistema cuántico de tres niveles.

El problema de calcular la respuesta no lineal de un sistema atómico cuántico ligeramente fuera de resonancia puede resolverse utilizando la teoría de perturbaciones dependiente del tiempo. Consideraremos la interacción de dos campos electromagnéticos con frecuencias ω_1 y ω_2 interactuando con un conjunto de átomos de tres niveles cuánticos cerca de resonancia con los campos (figura 3.1). El campo será considerado como clásico y el formalismo que usaremos es el de matriz de densidad, el que a continuación describimos brevemente.

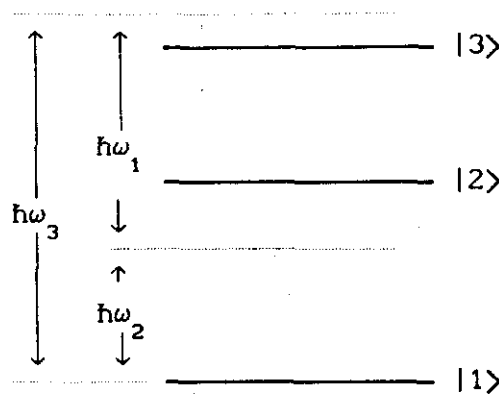


Figura 3.1

Niveles de energía y energías de los fotones involucrados en la derivación de la polarización no lineal

3.2.1 Las ecuaciones de matriz de densidad.

Supongamos que el estado $|\psi\rangle$ de un sistema se puede describir en términos de un conjunto de eigenestados $|\varphi_n\rangle$ de un operador dado, de la siguiente manera:

$$|\psi\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} c_n |\varphi_n\rangle \quad (3.22)$$

El valor esperado de un operador \hat{A} estará dado entonces por:

$$\langle \psi | \hat{A} | \psi \rangle = \sum_{n,m=0}^{\infty} c_n^* c_m \langle \varphi_n | \hat{A} | \varphi_m \rangle \quad (3.23)$$

En general el estado $|\psi\rangle$ nos es conocido sólo de manera incompleta, por lo que no conocemos los valores precisos de los coeficientes c_n , sino sólo ciertas propiedades estadísticas de ellos. Así, para conocer el valor esperado (3.23) necesitamos hacer un promedio sobre la distribución de estos coeficientes en algún ensemble. Denotaremos a este promedio por:

$$\overline{\langle \psi | \hat{A} | \psi \rangle} = \sum_{n,m=0}^{\infty} \overline{c_n^* c_m} \langle \varphi_n | \hat{A} | \varphi_m \rangle \quad (3.24)$$

Para simplificar la notación, definamos las siguientes cantidades:

$$\bar{A} \equiv \overline{\langle \psi | \hat{A} | \psi \rangle} \quad (3.25)$$

$$A_{nm} \equiv \langle \varphi_n | \hat{A} | \varphi_m \rangle \quad (3.26)$$

y definamos la matriz de densidad $\hat{\rho}$ de la siguiente manera:

$$\rho_{mn} \equiv \overline{c_n^* c_m} \quad (3.27)$$

en términos de la cual podemos reescribir el valor esperado promedio de \hat{A} de la siguiente forma:

$$\bar{A} = \sum_{n,m=0}^{\infty} \rho_{mn} A_{nm} = \sum_m (\hat{\rho} \hat{A})_{mm} \quad (3.28)$$

$$\bar{A} = \text{tr}(\hat{\rho} \hat{A}) \quad (3.29)$$

La dinámica de un sistema cuántico en el cual se considera la estadística estará dada, en la representación de Schrödinger por la matriz de densidad, y el valor esperado de cualquier operador se determinará a través de ella. Tomemos un ensemble de sistemas preparados de manera análoga, en el que por cada realización se observa el estado $|\psi_\nu\rangle$. Si asignamos una probabilidad p_ν a la ocurrencia de $|\psi_\nu\rangle$ (o a la ocurrencia del conjunto de coeficientes $c_n^{(\nu)}$), podemos entonces escribir:

$$\rho_{mn} = \sum_{\nu} c_n^{*(\nu)} c_m^{(\nu)} p_\nu \quad (3.30)$$

$$\text{como } c_m^{(\nu)} = \langle \varphi_m | \psi_\nu \rangle$$

El punto de partida es considerar al campo eléctrico fundamental como un haz gaussiano enfocado mediante una lente de distancia focal f , cintura (radio mínimo) ω_0 , rango de Rayleigh z_0 y número de onda k_1 , el cual está descrito por [4]:

$$E_1(\mathbf{r}, t) = [\mathcal{E}_1(\mathbf{r}) e^{-i\omega_1 t} + \text{c.c.}] / 2 \quad (2.36)$$

donde

$$\mathcal{E}(\mathbf{r}) = \mathcal{E}_0 e^{ik_1 z} \frac{1}{(1 + i\tau)} \exp \left[- \frac{(x^2 + y^2)}{\omega_0^2 (1 + i\tau)} \right] \quad (2.37)$$

$$y \quad \tau = \frac{(z - f)}{z_0} \quad (2.38)$$

es una coordenada z normalizada, referida a $z = f$ como origen. Las cantidades ω_0 , z_0 y el semiángulo de divergencia δ_0 están relacionados entre si por las relaciones:

$$z_0 = \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda} \quad (2.39a)$$

$$\delta_0 = \frac{\lambda}{\pi \omega_0} \quad (2.39b)$$

donde hemos reescrito a k_1 en términos de la longitud de onda.

Para calcular el segundo armónico generado por este campo, se considera la contribución a la amplitud $d\mathcal{E}_2(x, y, z)$ producida por una rebanada de cristal no lineal de ancho dz , la cual está dada por la ecuación (2.16). Se integra luego sobre z para obtener el campo armónico total \mathcal{E}_2 , dando por resultado:

$$\mathcal{E}_2(\mathbf{r}) = i\omega_2 \frac{1}{2} \left[\frac{\mu_0}{\epsilon_0 \epsilon_r} \right]^{1/2} \frac{P_0^{ef}}{1 + i\tau} e^{2ik_1 z} \int_0^L dz' \frac{e^{i\Delta k z'}}{1 + i\tau'} \exp \left[- \frac{2(x^2 + y^2)}{\omega_0^2 (1 + i\tau')} \right] \quad (2.40)$$

donde hemos introducido la polarización no lineal efectiva P_0^{ef} , que puede escribirse en términos de la potencia del haz fundamental $P^{(\omega)}$, de la

siguiente manera:

$$P_0^{ef} = d_{ef} \mathcal{E}_0^2 = 4d_{ef} \frac{P^{(\omega)}}{\pi \omega_0^2 \epsilon_0 c n_1} \quad (2.41)$$

La expresión (2.40) puede simplificarse si solamente consideramos el campo lejano ($\tau \rightarrow \infty$) fuera del cristal. En este caso:

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_2(\vec{r}) = & \omega_2 \frac{1}{2} \left[\frac{\mu_0}{\epsilon_0 \epsilon_r} \right]^{1/2} \frac{P_0^{ef}}{\tau} e^{2ik_1 z} \exp \left[-2(1-i\tau) \frac{(x^2 + y^2)}{\omega_0^2 \tau^2} \right] \\ & \times \int_0^L dz' \frac{e^{i\Delta k z'}}{1+i\tau'} \end{aligned} \quad (2.42)$$

La intensidad de segundo armónico $S(x, y)$ estará dada por:

$$\begin{aligned} S(x, y) = & \frac{1}{2} \epsilon_0 c n(2\omega) \mathcal{E}_2^2 \\ = & 4\omega^2 \cdot \left[\frac{\mu_0}{\epsilon_0 \epsilon_r} \right] \frac{d_{ef}^2 n(2\omega) [P^{(\omega)}]^2}{\pi^2 \omega_0^4 \epsilon_0 n^2(\omega) \tau^2} \exp \left[-\tau \frac{(x^2 + y^2)}{\omega_0^2 \tau^2} \right] |H(\sigma, \xi)|^2 \end{aligned} \quad (2.43)$$

con

$$H(\sigma, \xi) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\xi}^{\xi} d\tau' \frac{e^{i\sigma\tau'}}{1+i\tau'} \quad (2.44a)$$

$$\xi \equiv \frac{L}{2\alpha_0} \quad (2.44b)$$

$$\sigma \equiv \alpha_0 \Delta k \quad (2.44c)$$

Finalmente, la potencia de segundo armónico se obtiene integrando

$S(x, y)$:

$$P^{(2\omega)} = \iint dx dy S(x, y) \quad (2.45)$$

$$P^{(2\omega)} = \frac{2}{\pi c} \left[\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right]^{3/2} \frac{\omega^3 d_{ef}^2 L}{n^2(\omega)} [P^{(\omega)}]^2 h(\sigma, \xi) \quad (2.46)$$

$$\text{con: } h(\sigma, \xi) = \frac{\pi^2}{\xi} |H(\sigma, \xi)|^2 = \frac{1}{4\xi} \left| \int_{-\xi}^{\xi} d\tau' \frac{e^{i\sigma\tau'}}{1+i\tau'} \right|^2 \quad (2.47)$$

La función $h(\sigma, \xi)$ contiene toda la información sobre los parámetros optimizables σ y ξ que representan el desfazamiento espacial y la potencia de enfoque, respectivamente.

La integración numérica de (2.46) evaluada por Boyd y Kleinman en [5], muestra que $h(\sigma, \xi)$ es máxima para:

$$\xi_m = 2.84 \quad (2.48)$$

$$\text{y } h_m = 1.068 \quad (2.49)$$

El valor preciso de σ_m no es tan importante ya que experimentalmente siempre se puede hacer un ajuste fino de la orientación del cristal para tener σ_m y por tanto maximizar la potencia de salida. La condición (2.48) traducida a L y γ_0 mediante (2.44b) nos dice que la eficiencia de conversión para una potencia de entrada y una longitud del cristal fijas, es máxima cuando la cintura del haz se ubica en el centro del cristal y se cumple la relación:

$$L = 5.68\gamma_0 \quad (2.50)$$

La potencia máxima obtenible, dada por (2.46), muestra una característica sobresaliente, en el caso de haces enfocados la potencia crece linealmente con la longitud del cristal, en contraparte al resultado para ondas planas en que lo hace cuadráticamente.

Finalmente, hace falta resaltar el hecho de que tanto en el caso de ondas planas como de haces enfocados hemos usado la aproximación de que la eficiencia de conversión es lo suficientemente pequeña para considerar que el haz fundamental no cambia su intensidad. Esto resulta importante al momento de evaluar las expresiones (2.22) y (2.46) para condiciones experimentales, ya que podría darse el caso de obtener una eficiencia mayor a 1!, situación obviamente imposible. En ese caso, habría que resolver el

sistema de ecuaciones (2.16-18) completo.

Referencias del capítulo 2.

- 1.- Kleinman D., *Phys. Rev.* 126, 1977 (1962).
- 2.- Landau L. y E. Lifshitz, "*Electrodynamics of continuous media*", Pergamon Press, 1975.
- 3.- Born M. & E. Wolf. "*Principles of Optics*", Pergamon Press, 5^a edición 1975.
- 4.- Verdeyen J.T., "*Laser Electronics*", Ed. Prentice-Hall, 1981. (cap. 3)
- 5.- Boyd G.D. y D. Kleinman, *J. Appl. Phys.* 39, 3597(1968).

Capítulo 3.

La susceptibilidad no lineal.

La teoría desarrollada en el capítulo anterior es fundamentalmente fenomenológica. En ella se supone la existencia de la polarización no lineal dada por la ecuación constitutiva (2.9) simplemente como algo físicamente plausible, por lo tanto esta teoría no puede decirnos nada acerca de su origen, su magnitud o sus propiedades. Para obtener estas características de la respuesta no lineal, contenidas básicamente en el tensor de susceptibilidad de segundo orden en el campo eléctrico recurriremos al cálculo a partir de primeros principios, de la interacción entre radiación y materia. Este procedimiento tiene la ventaja adicional de hacer aparente la relación entre las constantes macroscópicas de acoplamiento y los parámetros atómicos relevantes.

Un cálculo completo deberá tomar en cuenta la naturaleza cuántica de la materia e incluso de la radiación. Sin embargo, un modelo clásico puede dar una idea cualitativamente correcta de cuales son los mecanismos responsables de la respuesta no lineal.

En este capítulo se presenta primero un modelo clásico, que es una extensión del modelo de Drude y Lorentz para la respuesta de un conjunto de electrones ligados ante la propagación del campo electromagnético. Obtenemos después una expresión para la polarización a partir de una solución perturbativa del problema cuántico semiclásico de la interacción de radiación con un conjunto de moléculas de tres niveles. Este último resultado nos permitirá además, deducir ciertas propiedades de simetría de los tensores involucrados.

3.1 Un modelo atómico clásico de no linealidad; el oscilador anarmónico forzado.

Consideremos que la respuesta electrónica de un medio material (dieléctrico) ante la propagación del campo electromagnético puede simularse mediante un modelo que supone al medio constituido por un conjunto de electrones ligados armónicamente que solo interactúan con el campo eléctrico forzante. Drude y Lorentz [1] usaron este modelo para calcular la polarización lineal. En él se consideró que las frecuencias resonantes de los osciladores correspondían a las líneas espectrales atómicas observadas.

Para desplazamientos muy grandes respecto de la posición de equilibrio (provocadas por campos eléctricos de magnitudes grandes) se debe de tomar en cuenta la anarmonicidad de la fuerza restauradora de los osciladores. Consideremos entonces el movimiento de un oscilador anarmónico forzado, que por simplicidad consideraremos unidimensional y que supondremos amortiguado. El término forzante proviene de la interacción eléctrica del electrón con el campo, al que escribiremos como la suma de dos campos oscilando a frecuencias ω_1 y ω_2 . Con esto, la ecuación de movimiento para la posición x del electrón con carga e y masa m es:

$$\ddot{x} + \gamma \dot{x} + \omega_0^2 x + \vartheta x^2 = \frac{e}{m} \left[\frac{E_1}{2} (e^{i\omega_1 t} + e^{-i\omega_1 t}) + \frac{E_2}{2} (e^{i\omega_2 t} + e^{-i\omega_2 t}) \right] \quad (3.1)$$

donde γ es la constante de amortiguamiento, ω_0 es la frecuencia natural del resorte y el punto sobre x denota derivación respecto al tiempo.

Para resolver esta ecuación podemos usar un método perturbativo. Tomando como parámetro al coeficiente anarmónico ϑ , la expresión para el desplazamiento x se puede desarrollar como [2]:

$$x(t) = x_0(t) + \theta x_1(t) + \theta^2 x_2(t) + \dots \quad (3.2)$$

Sustituyendo esta expresión en (3.1) y agrupando términos en cada potencia de θ , igualándolos luego a cero, se obtiene el conjunto de ecuaciones siguiente:

$$\ddot{x}_0 + \gamma \dot{x}_0 + \omega_0^2 x_0 = F(t), \quad (3.3)$$

$$\ddot{x}_1 + \gamma \dot{x}_1 + \omega_0^2 x_1 = -x_0^2, \quad (3.4)$$

etc., donde $F(t)$ es el término del lado derecho de la ecuación (3.1),

$$F(t) = \frac{e}{m} \left[\frac{E_1}{2} (e^{i\omega_1 t} + e^{-i\omega_1 t}) + \frac{E_2}{2} (e^{i\omega_2 t} + e^{-i\omega_2 t}) \right] \quad (3.5)$$

Sólo consideraremos el primer orden de perturbación dado por (3.4).

La ecuación (3.3) es la de un oscilador lineal forzado, cuya solución es:

$$x_0(t) = \frac{e}{m} \sum_{j=1}^2 \frac{E_j}{2D(\omega_j)} (e^{i\omega_j t} + e^{-i\omega_j t}) \quad (3.6)$$

donde hemos introducido la función $D(\omega_j)$ definida por:

$$D(\omega_j) \equiv \omega_0^2 - \omega_j^2 + i\gamma\omega_j \quad (3.7)$$

Para resolver (3.4) vemos que el término $-x_0^2(t)$ actúa como una fuerza forzante, la cual, utilizando (3.6), contendrá términos oscilando a $2\omega_1$, $2\omega_2$, $\omega_1 \pm \omega_2$ y términos constantes. La solución tendrá entonces términos que oscilen con cada una de esas frecuencias. Consideremos sólo la parte que oscila con frecuencia $\omega_1 + \omega_2$. La ecuación a resolver es entonces:

$$\ddot{x}_1 + \gamma \dot{x}_1 + \omega_0^2 x_1 = - \frac{e^2 E_1 E_2}{2m^2 D(\omega_1) D(\omega_2)} [e^{i(\omega_1 + \omega_2)t} + e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t}] \quad (3.8)$$

La solución de esta ecuación es:

$$x_1(t) = - \frac{e^2 E_1 E_2}{2m^2 D(\omega_1) D(\omega_2) D(\omega_1 + \omega_2)} [e^{i(\omega_1 + \omega_2)t} + e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t}] \quad (3.9)$$

La respuesta del medio, representada por la polarización del sistema puede expresarse en términos de las cantidades atómicas, en primera aproximación, como la suma de los momentos dipolares atómicos:

$$P(t) = N e x(t) \quad (3.10)$$

donde N es la densidad de átomos. Podemos dividir esta polarización en dos partes

$$P(t) = P_L(t) + P_{NL}(t) \quad (3.11)$$

donde

$$P_L = N e x_0(t) = \frac{N e^2}{m} \sum_{j=1}^2 \frac{E_j}{2D(\omega_j)} (e^{i\omega_j t} + e^{-i\omega_j t}) \quad (3.12)$$

es la polarización lineal y

$$\begin{aligned} P_{NL}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) &= N e \vartheta x_1(t) \\ &= - \frac{\vartheta N e^3 E_1 E_2}{2m^2 D(\omega_1) D(\omega_2) D(\omega_1 + \omega_2)} [e^{i(\omega_1 + \omega_2)t} + e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t}] \end{aligned} \quad (3.13)$$

es la polarización no lineal.

Las susceptibilidades lineal y no lineal están definidas por:

$$P_L(\omega) = \epsilon_0 \chi_L(\omega) E(\omega) \quad (3.14)$$

$$y \quad P_{NL}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \epsilon_0 \chi_{NL}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) E(\omega_1) E(\omega_2) \quad (3.15)$$

y el significado de los argumentos de $\chi_{NL}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2)$ se explica en el apéndice A.

Entonces:

$$\chi_L(\omega) = \frac{N e^2}{m \epsilon_0 D(\omega)} \quad (3.16)$$

$$y \quad \chi_{NL}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) = - \frac{\vartheta N e^3}{\epsilon_0 m^2 D(\omega_1) D(\omega_2) D(\omega_1 + \omega_2)} \quad (3.17)$$

Estos son los principales resultados de nuestro modelo de osciladores unidimensionales clásicos. Para examinar sus consecuencias, examinemos primero la susceptibilidad lineal dada en (3.16) para frecuencias cercanas

a la frecuencia natural de los osciladores. En esta región:

$$D(\omega_j) = \omega_0^2 - \omega_j^2 + i\gamma\omega_j = (\omega_0 + \omega_j)(\omega_0 - \omega_j) + i\gamma\omega_j$$

$$\approx 2\omega_0(\omega_0 - \omega_j) + i\gamma\omega_0 \quad (3.18)$$

y con esto, al separar a χ_L en sus partes real e imaginaria, tendremos:

$$\chi_L = \frac{Ne^2}{2m\epsilon_0\omega_0} \left\{ \frac{(\omega_0 - \omega_j)}{(\omega_0 - \omega_j)^2 + \gamma^2/4} - i \frac{\gamma/2}{(\omega_0 - \omega_j)^2 + \gamma^2/4} \right\} \quad (3.19)$$

que reproduce las partes de absorción y dispersión conocidas [3].

Para analizar el significado de la susceptibilidad no lineal, comencemos por notar que ésta se puede factorizar en términos de la susceptibilidad lineal de la siguiente forma:

$$\chi_{NL}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) = \frac{m\partial\epsilon_0}{N^2 e^3} \chi_L(\omega_1) \chi_L(\omega_2) \chi_L(\omega_1 + \omega_2) \quad (3.20)$$

R.C. Miller propuso [4], que este resultado se podía generalizar al caso tridimensional de la siguiente manera:

$$\chi_{NL}^{(2)}{}_{ijk}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) = \chi_{Lii}(\omega_1) \chi_{Ljj}(\omega_2) \chi_{Lkk}(\omega_1 + \omega_2) \Delta_{ijk} \quad (3.21)$$

y encontró que el parámetro Δ_{ijk} era aproximadamente constante para una variedad de cristales. Una consecuencia de esto, es que en principio un material con una susceptibilidad lineal (índice de refracción) grande, es un material con susceptibilidad no lineal grande.

Este resultado adolece de los defectos propios del modelo; por una parte, hace falta tomar en cuenta la interacción mutua entre los elementos dispersores que constituyen al medio. Esto se logra, considerando que el campo local que actúa sobre un electrón está dado por el campo eléctrico macroscópico más un término proporcional a la polarización, lo que se conoce como corrección de Lorentz [5]. Por otra parte, estos resultados son como ya mencionamos sólo cualitativos, para tener una teoría

$$\rho_{mn} = \langle \varphi_m | \left\{ \sum_{\nu} p_{\nu} |\psi_{\nu}\rangle \langle \psi_{\nu}| \right\} | \varphi_n \rangle \quad (3.31)$$

por tanto

$$\hat{\rho} = \sum_{\nu} p_{\nu} |\psi_{\nu}\rangle \langle \psi_{\nu}| \quad (3.32)$$

es la matriz de densidad.

Para encontrar la ecuación de evolución de la matriz de densidad, tomemos (3.32) multiplicada por $i\hbar$ y derivemosla respecto al tiempo:

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = \sum_{\nu} \left\{ i\hbar \frac{d|\psi_{\nu}\rangle}{dt} p_{\nu} \langle \psi_{\nu}| + i\hbar |\psi_{\nu}\rangle p_{\nu} \frac{d\langle \psi_{\nu}|}{dt} \right\} \quad (3.33)$$

Usando la ecuación de Schrödinger para $|\psi_{\nu}\rangle$:

$$i\hbar \frac{d|\psi_{\nu}\rangle}{dt} = \mathcal{H} |\psi_{\nu}\rangle \quad (3.34)$$

con \mathcal{H} el Hamiltoniano del sistema, en (3.33) llegamos a:

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}, \mathcal{H}] \quad (3.35)$$

donde los paréntesis cuadrados denotan el conmutador usual en mecánica cuántica. Esta es la ecuación de Liouville cuántica para el operador $\hat{\rho}$. Para incluir los efectos del amortiguamiento en este formalismo, se modifica la ecuación (3.35) introduciendo un término extra de la forma [6]:

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\rho, \mathcal{H}] + \Gamma(\rho - \rho_{eq}) \quad (3.36)$$

donde los elementos de matriz de Γ tienen unidades de inverso del tiempo y ρ_{eq} es la matriz de densidad del sistema en equilibrio térmico en ausencia de campo. Los elementos diagonales de Γ describen los procesos de amortiguamiento responsables de los decaimientos no radiativos de los diferentes estados, como son la emisión espontánea, colisiones, etc. y los elementos no diagonales representan simplemente el amortiguamiento de los elementos no diagonales de la matriz de densidad.

3.2.2 Solucion perturbativa.

El hamiltoniano más general que describe la interacción de un campo electromagnético con un electrón ligado a un átomo es [7]:

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2m} [\mathbf{p} - e\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)]^2 + eV(\mathbf{r}) \quad (3.37)$$

donde \mathbf{p} es el momento del electrón, \mathbf{A} es el potencial vectorial y $V(\mathbf{r})$ es el potencial de atracción coulombiana entre el electrón y el núcleo. Es posible ver [7] que este hamiltoniano puede transformarse canonicamente a:

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2m} \mathbf{p}^2 + eV(\mathbf{r}) - \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{H}_0 + V(t) \quad (3.38)$$

donde

$$\boldsymbol{\mu} = e\mathbf{r} \quad (3.39)$$

es el momento dipolar atómico y \mathbf{E} es el campo eléctrico. Además

$$\mathcal{H}_0 = \frac{1}{2m} \mathbf{p}^2 + eV(\mathbf{r}) \quad (3.40)$$

$$y \quad V(t) = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (3.41)$$

Tomemos los eigenestados $|i\rangle$ de \mathcal{H}_0 como nuestro conjunto ortonormal y completo de estados y consideremos a la interacción representada por $V(t)$ como perturbación, esto es:

$$\mathcal{H}_0 |i\rangle = E_i |i\rangle \quad (3.42)$$

con esto, la ecuación de Liouville modificada (3.36) se transforma entonces a:

$$\frac{d}{dt} \rho_{ij} = -i\omega_{ij} \rho_{ij} + \frac{i}{\hbar} [\rho, V(t)]_{ij} + \Gamma_{ij} (\rho - \rho_{eq})_{ij} \quad (3.43)$$

donde

$$\omega_{ij} \equiv \frac{E_i - E_j}{\hbar} \quad (3.44)$$

La matriz ρ_{eq} representa la distribución de Boltzmann, que en la representación escogida es diagonal y toma la forma:

$$\rho_{eq} = \frac{e^{-\beta \mathcal{H}_0}}{\text{Tr } e^{-\beta \mathcal{H}_0}} ; \beta = (kT)^{-1} \quad (3.45)$$

Para obtener una solución perturbativa de (3.43), procedamos de

manera completamente análoga al cálculo clásico de la sección anterior: introduzcamos un parámetro de pequeñez λ , como $V(t)$ depende de la magnitud de E , podemos tomar $\lambda = E/E_{\text{atómico}}$, el cual factorizamos de $V(t)$:

$$V(t) = \lambda W(t) \quad (3.46)$$

De esta manera, podemos hacer un desarrollo en potencias de λ :

$$\rho(t) = \rho^{(0)}(t) + \lambda \rho^{(1)}(t) + \lambda^2 \rho^{(2)}(t) + \dots \quad (3.47)$$

Al introducir este desarrollo en (3.43) e igualar los términos en cada potencia de λ se llega a:

$$\rho^{(0)} = \rho_{\text{eq}} \quad (3.48a)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{ij}^{(n)} = - (i\omega_{ij} - \Gamma_{ij}) \rho_{ij}^{(n)} + \frac{i}{\hbar} [\rho^{(n-1)}, W(t)]_{ij}; \quad n \geq 1 \quad (3.48b)$$

La solución formal de (3.48b) es:

$$\rho_{ij}^{(n)} = - \frac{i}{\lambda \hbar} \int_{-\infty}^t e^{i(\omega_{ij} - \Gamma_{ij})(t'-t)} [V(t'), \rho^{(n-1)}(t')]_{ij} dt' \quad (3.49)$$

De esta expresión se ve que $\rho_{ij}^{(n)} \propto \lambda^{-n}$, por lo que al regresar a $\rho(t)$ en (3.47), no dependerá explícitamente de λ , por lo que en lo sucesivo omitiremos λ en las expresiones para $\rho(t)$.

Si consideramos al campo eléctrico como la suma de dos campos monocromáticos:

$$E(t) = \frac{E_1}{2} e^{-i\omega_1 t} + \frac{E_2}{2} e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.} \quad (3.50)$$

y consideramos sólo los términos cerca de resonancia, los elementos de matriz del hamiltoniano de interacción $V_{ij} = \langle i|V(t)|j \rangle$ son :

$$V_{12} = -\mu_{12} \cdot \left(\frac{E_2}{2} e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.} \right) = V_{21} \quad (3.51a)$$

$$V_{23} = -\mu_{23} \cdot \left(\frac{E_1}{2} e^{-i\omega_1 t} + \text{c.c.} \right) = V_{32} \quad (3.51b)$$

$$V_{11} = 0 \quad (3.51c)$$

Para calcular $\rho^{(1)}(t)$ de acuerdo a (3.49) necesitamos calcular $[V, \rho^{(0)}]$, con $\rho_{ij}^{(0)} = \rho_{ij}^{\text{eq}} \delta_{ij}$. Si suponemos que la población en equilibrio

del nivel $|3\rangle$ es despreciable de modo que $\rho_{33}^{eq} = 0$,

$$[V, \rho^{(0)}] = \begin{pmatrix} 0 & V_{12}(\rho_{22}^{eq} - \rho_{11}^{eq}) & 0 \\ V_{12}(\rho_{11}^{eq} - \rho_{22}^{eq}) & 0 & -V_{23}\rho_{22}^{eq} \\ 0 & V_{23}\rho_{12}^{eq} & 0 \end{pmatrix} \quad (3.52)$$

El elemento de matriz $\rho_{12}^{(1)}$ es entonces

$$\rho_{12}^{(1)}(t) = \frac{(\rho_{22}^{eq} - \rho_{11}^{eq})}{2\hbar} \left\{ \frac{\mu_{12} \cdot E_2 e^{-i\omega_2 t}}{(\omega_{12} - \omega_2 - i\Gamma_{12})} + \frac{\mu_{12} \cdot E_2^* e^{i\omega_2 t}}{(\omega_{12} + \omega_2 - i\Gamma_{12})} \right\} \quad (3.53)$$

Si suponemos que estamos cerca de resonancia $\omega_{12} \approx \omega_2$ y entonces:

$$\rho_{12}^{(1)}(t) \approx \frac{(\rho_{22}^{eq} - \rho_{11}^{eq})}{2\hbar \Delta_{12}(\omega_2)} \mu_{12} \cdot E_2 e^{-i\omega_2 t} \quad (3.54)$$

donde hemos definido:

$$\Delta_{ij}(\omega) \equiv \omega_{ij} - \omega - i\Gamma_{ij} \quad (3.55)$$

Los otros elementos de matriz diferentes de cero son:

$$\rho_{21}^{(1)}(t) = \rho_{12}^{(1)}(t)^* \quad (3.56a)$$

$$\rho_{23}^{(1)}(t) \approx -\frac{\rho_{22}^{eq}}{2\hbar \Delta_{23}(\omega_1)} \mu_{23} \cdot E_1 e^{-i\omega_1 t} \quad (3.56b)$$

$$y \quad \rho_{32}^{(1)}(t) = \rho_{23}^{(1)}(t)^* \quad (3.56c)$$

Definamos las envolventes suaves σ_{ij} de los elementos de matriz fuera de la diagonal a través de las siguientes relaciones:

$$\rho_{12}^{(1)} = \sigma_{12} e^{-i\omega_2 t} \quad (3.57a)$$

$$\rho_{23}^{(1)} = \sigma_{23} e^{-i\omega_1 t} \quad (3.57b)$$

$$\sigma_{12} = \frac{(\rho_{22}^{eq} - \rho_{11}^{eq})}{2\hbar \Delta_{12}(\omega_2)} \mu_{12} \cdot E_2 = \sum_{\beta} \frac{(\rho_{22}^{eq} - \rho_{11}^{eq})}{2\hbar \Delta_{12}(\omega_2)} (\mu_{12})_{\beta} E_{2\beta} \quad (3.58a)$$

$$y \quad \sigma_{23} = -\sum_{\beta} \frac{\rho_{22}^{eq}}{2\hbar \Delta_{23}(\omega_1)} (\mu_{23})_{\beta} E_{1\beta} \quad (3.58b)$$

Para calcular la matriz de densidad a segundo orden $\rho^{(2)}$, el camino a

seguir es el siguiente: tomar el conmutador de $V(t)$ con la matriz $\rho^{(1)}$ dada en (3.57,58), insertar en (3.49) e integrar. El resultado es:

$$\rho_{13}^{(2)} = -\frac{\sigma_{12}}{2\hbar} \int_{\gamma} \left[\frac{(\mu_{23})_{\gamma} E_{1\gamma}}{\Delta_{13}(\omega_1 + \omega_2)} e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + \frac{(\mu_{23})_{\gamma} E_{1\gamma}^*}{\Delta_{13}(\omega_2 - \omega_1)} e^{-i(\omega_2 - \omega_1)t} \right] + \frac{\sigma_{23}}{2\hbar} \int_{\gamma} \left[\frac{(\mu_{12})_{\gamma} E_{2\gamma}}{\Delta_{13}(\omega_1 + \omega_2)} e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + \frac{(\mu_{12})_{\gamma} E_{2\gamma}^*}{\Delta_{13}(\omega_2 - \omega_1)} e^{-i(\omega_2 - \omega_1)t} \right]$$

$$\rho_{31}^{(2)} = \rho_{13}^{(2)*} \quad (3.59)$$

Los demás elementos de matriz de $\rho^{(2)}$ se calculan de manera similar, y contendrán términos que oscilen a $2\omega_1$, $2\omega_2$, $\omega_1 \pm \omega_2$ y términos constantes.

La matriz de densidad así obtenida nos permite calcular el valor esperado de cualquier operador que represente las variables atómicas. En particular, estamos interesados en calcular la polarización macroscópica del sistema, que está dada por la suma de las polarizabilidades atómicas.

La componente α de la polarización a segundo orden que oscila con frecuencia $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ está entonces dada por:

$$P_{\alpha}^{(2)} = N \text{tr}(\rho^{(2)} \mu_{\alpha}) = N [\rho_{13}^{(2)} (\mu_{31})_{\alpha} + \rho_{31}^{(2)} (\mu_{13})_{\alpha}] \quad (3.60)$$

como $\mu_{31} = \mu_{13}^*$

$$P_{\alpha}^{(2)} = N \rho_{13}^{(2)} (\mu_{31})_{\alpha} + \text{c. c.} \quad (3.61)$$

$$P_{\alpha}^{(2)} = \sum_{\beta, \gamma} \left\{ -\frac{N(\rho_{22}^{\text{eq}} - \rho_{11}^{\text{eq}}) (\mu_{12})_{\beta} (\mu_{23})_{\gamma} (\mu_{31})_{\alpha}}{4\hbar^2 \Delta_{13}(\omega_1 + \omega_2) \Delta_{12}(\omega_2)} - \frac{N\rho_{22}^{\text{eq}} (\mu_{12})_{\gamma} (\mu_{23})_{\beta} (\mu_{31})_{\alpha}}{4\hbar^2 \Delta_{13}(\omega_1 + \omega_2) \Delta_{23}(\omega_1)} \right\} E_{1\beta} E_{2\gamma} e^{-i\omega_3 t} + \text{c. c.} \quad (3.62)$$

Finalmente, la susceptibilidad no lineal definida por:

$$P_{\alpha}^{(2)} = \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) E_{1\beta}(\omega_1) E_{2\gamma}(\omega_2) \quad (3.63)$$

está dada por:

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) = - \frac{(N_2 - N_1) (\mu_{12})_{\beta} (\mu_{23})_{\gamma} (\mu_{31})_{\alpha}}{4\hbar^2 \Delta_{13}(\omega_1 + \omega_2) \Delta_{12}(\omega_2)} - \frac{N_2 (\mu_{12})_{\gamma} (\mu_{23})_{\beta} (\mu_{31})_{\alpha}}{4\hbar^2 \Delta_{13}(\omega_1 + \omega_2) \Delta_{23}(\omega_1)} \quad (3.64)$$

donde hemos usado $N_1 = N \rho_{11}^{eq}$.

Este resultado puede ser usado para realizar cálculos explícitos del tensor $\chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$ para sistemas específicos. Sin embargo, su principal importancia reside en el hecho de que nos permite deducir propiedades generales de este tensor, además de permitirnos derivar la relación constitutiva (2.9) a partir de primeros principios.

En particular, es posible utilizar este resultado para demostrar que la susceptibilidad a segundo orden en el campo eléctrico es cero si las funciones de onda de los estados atómicos tienen paridad definida. El triple producto $\mu_{12} \mu_{23} \mu_{31}$ que aparece en (3.61) involucra a los tres estados $|1\rangle$, $|2\rangle$ y $|3\rangle$. Si $|1\rangle$ y $|2\rangle$ tienen distinta paridad, entonces $\mu_{12} \neq 0$; pero si $|2\rangle$ y $|3\rangle$ tienen también paridad opuesta, de manera que $\mu_{23} \neq 0$, entonces $|1\rangle$ y $|3\rangle$ deben tener la misma paridad y por tanto $\mu_{13} = 0$. Así, siempre que las funciones de onda atómicas tengan paridad definida, resulta imposible la generación de segundo armónico.

Sólo en el caso en que no se pueda asociar una paridad definida a cada función de onda puede resultar una $\chi^{(2)}$ diferente de cero y la generación de segundo armónico resulta entonces posible. Este es el caso en cristales donde las funciones de onda atómicas están perturbadas por campos locales dentro del cristal, cuya simetría está ligada estrechamente a la del cristal. Si estos campos no tienen simetría ante reflexiones,

como ocurre en los cristales no centrosimétricos, entonces las funciones de onda estarán perturbadas de manera que pierdan su paridad.

Referencias del capítulo 3.

- 1.- Lorentz H.A., "The theory of electrons", B.G. Teubner, 1916.
- 2.- Marion J.B., "Dinámica clásica de las partículas y sistemas", ed. Reverté, 1981.
- 3.- Loudon R., "The quantum theory of light", Oxford University Press, 1979.
- 4.- Miller R.C., *Appl. Phys. Lett.* 5, 17 (1964).
- 5.- Born M. & E. Wolf, "Principles of Optics", Pergamon Press, 5^a edición 1975.
- 6.- Karplus R. y J. Schwinger, *Phys. Rev.* 73, 1020 (1948).
- 7.- Louisell W.H., "Quantum statistical properties of radiation", ed. John Wiley, 1973.

Capítulo 4.

Montaje experimental.

El montaje usado en los experimentos consiste de un láser sintonizable de pigmento bombeado por un láser de nitrógeno, un cristal de fosfato dihidrogenado de amonio (ADP) como medio no lineal, provisto de un sistema adecuado para lograr las condiciones óptimas de acoplamiento y un equipo de detección.

La figura 4.1 muestra el esquema básico usado en los experimentos de generación de segundo armónico. Los pulsos del láser de pigmento son primero colimados por una lente, para luego ser dirigidos con un sistema de espejos de primera superficie hacia la celda que contiene al cristal de ADP, sobre el cual se enfocan por medio de otra lente. El cristal está inmerso en un medio de índice de refracción semejante al suyo, contenido en un recipiente con ventanas de cuarzo (transparentes al ultravioleta (UV)), acoplado a un goniómetro que permite rotar el cristal con una precisión de un minuto (1') de arco.

A la salida de esta celda se encuentra un filtro de absorción que bloquea el haz fundamental (visible) y permite el paso del segundo armónico (UV). Finalmente se usa una lente de cuarzo para colimar el haz de segundo armónico. Este haz es dirigido hacia un monocromador, con el cual se mide su longitud de onda. A la salida del monocromador se detecta mediante un fotodiodo, cuya señal se visualiza en un osciloscopio. A continuación se describen las diferentes partes que constituyen el dispositivo experimental.

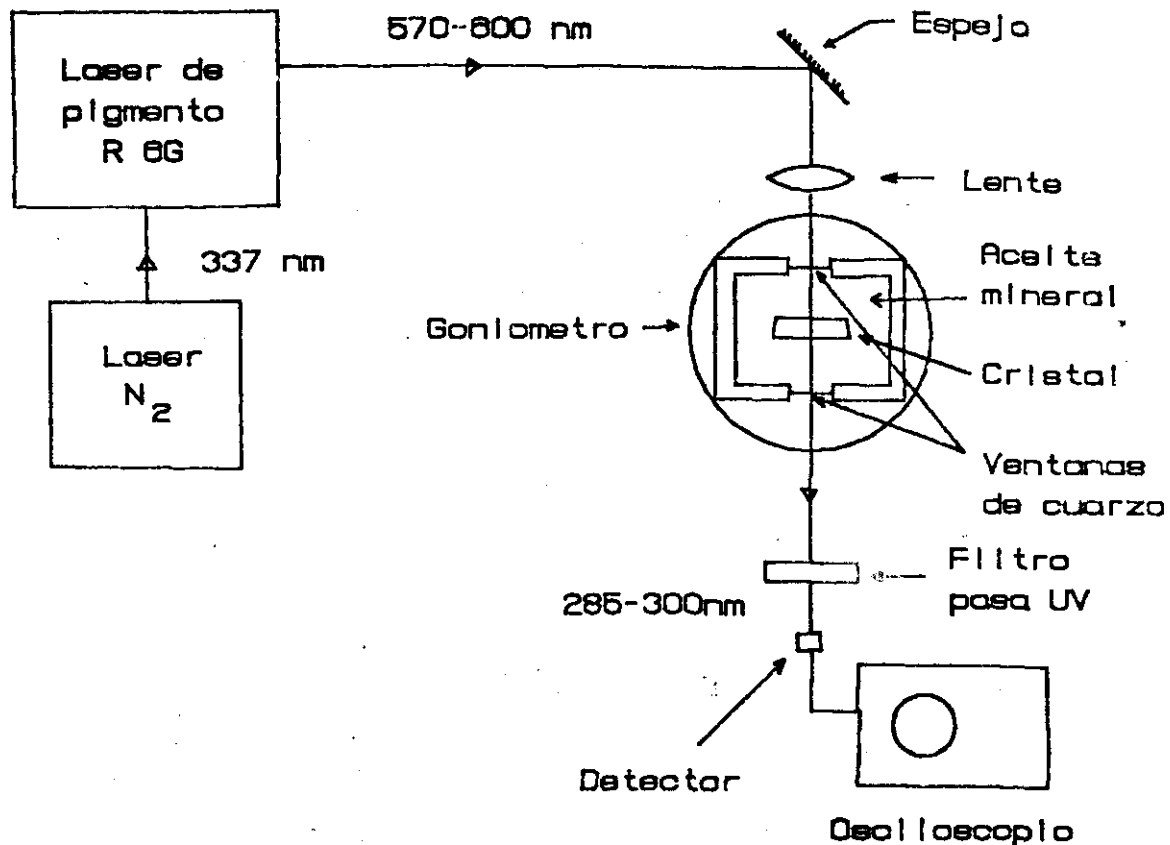


Figura 4.1
Montaje experimental.

4.1 El laser de bombeo.

El láser de nitrógeno molecular opera en la transición superradiante entre los estados $C^3\Pi_u$ y $B^3\Pi_g$ de la molécula de N_2 [1], cuya estructura de niveles se muestra en la figura 4.2. Las moléculas de nitrógeno son llevadas a su estado excitado por colisiones con electrones altamente energéticos generados por una descarga transversal. La sección transversal total de excitación electrónica desde el estado base a los estados B es mayor que la de los estados C , lo que podría hacer pensar que la acción láser entre los estados C y B resultase imposible. Sin embargo, un análisis detallado muestra que sí es posible lograr una inversión de población por impacto electrónico entre el primer subnivel vibracional

($v'=0$) del multiplete $C^3\Pi_u$ y el primer subnivel vibracional ($v''=0$) de $B^3\Pi_g$. La separación entre estos dos subniveles corresponde a una longitud de onda de 3371 Å. Otro problema práctico para la generación láser es que el estado C tiene una vida media radiativa de cerca de 40 ns, mientras que la del estado B es de 10 μ s, donde además el estado A subyacente es metaestable. En consecuencia sólo es posible la operación láser en un régimen pulsado (con pulsos de duración menor a 40 ns). La existencia del nivel metaestable A implica la necesidad de evacuar el nitrógeno de la cavidad del láser si se quiere operar en un régimen de alta repetición de pulsos.

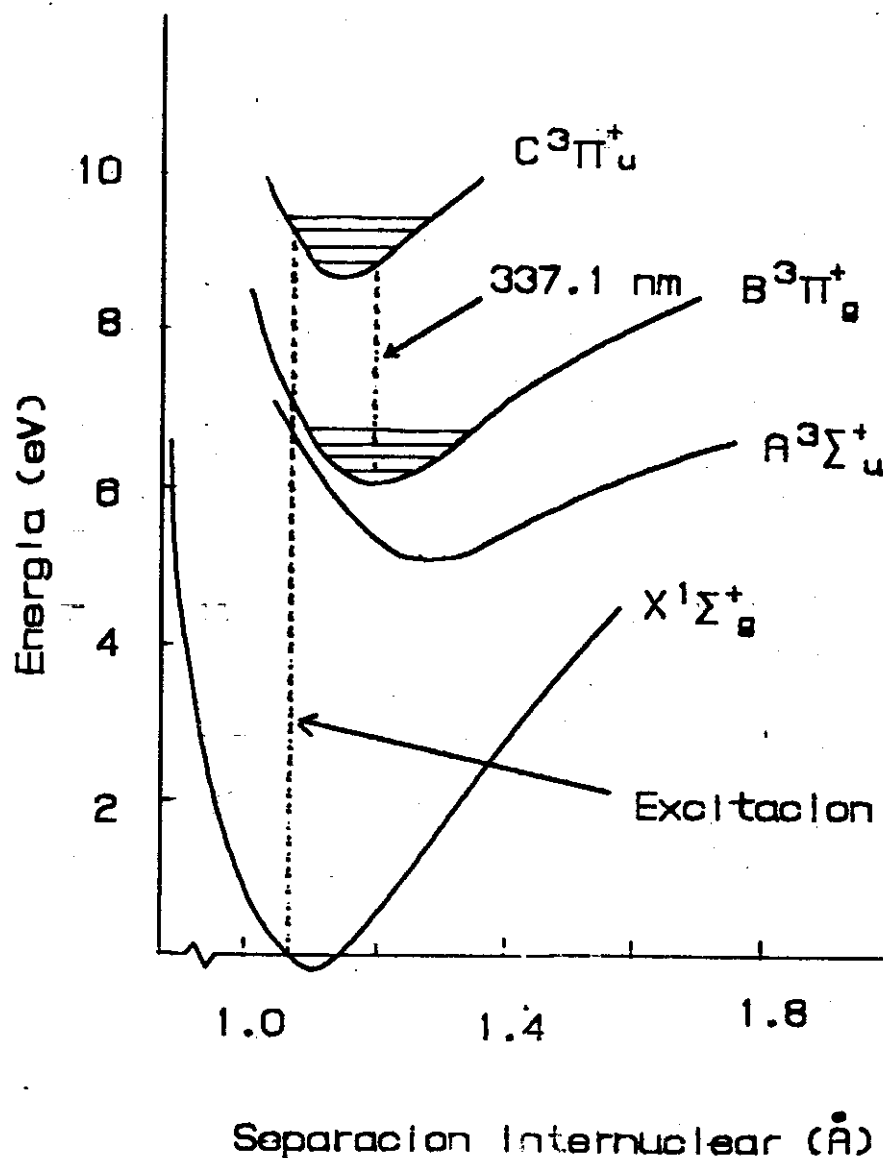


Figura 4.2
Diagrama de niveles de energía de la molécula de N_2 .

Como la transición $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ es superradiante, con ganancias de hasta 340 dB/m [2], se puede hacer un láser con la suficiente potencia y coherencia sin necesidad de una cavidad óptica.

El láser de nitrógeno utilizado en los experimentos fué diseñado y construido en la UAM-Iztapalapa. El sistema consta de un tubo de descarga transversal de 90 cm de longitud por el que fluye nitrógeno molecular a una presión de aproximadamente 50 torr y un circuito eléctrico acoplado a una fuente de alto voltaje para generar una descarga ultrarrápida de alta densidad de corriente, tal como se muestra en la figura 4.3.

El circuito utilizado es del tipo Blumlein [3] y su principio de operación es el siguiente: uno de los condensadores se carga mediante la fuente de alto voltaje (de corriente directa), al tener los dos condensadores una placa común y estar conectados a través de una bobina, ambos se cargan a la misma diferencia de potencial. Cuando el voltaje entre la placa común y la placa superior del condensador 1 alcanza un valor determinado, se produce una descarga en la bujía, descargando rápidamente el condensador 1. En este momento se establece una diferencia de potencial muy grande entre la placa superior del condensador 2 y la del condensador 1, tendiendo este a descargarse en ella. Aunque en principio la corriente podría fluir a través de la bobina, el proceso es tan rápido que en esa escala de tiempo ésta se comporta como un circuito abierto, produciéndose entonces una descarga a través del gas contenido en la cavidad. Un factor importante para que este esquema funcione es que la inductancia de los condensadores empleados se mantenga lo más baja posible para que el proceso de descarga sea lo suficientemente rápido. Esta es la razón por la que se usan condensadores planos.

Las características del láser de nitrógeno, determinadas mediante el

sistema de detección descrito en la sección 4.4, se resumen en la tabla

4.1.

Energía por pulso	1.0 mJ
Duración del pulso	8.0 ns
Sección transversal del haz	3 cm x 0.5 cm
Longitud de onda	337.1 nm
Divergencia angular	7.5 mrad

TABLA 4.1
Características del laser de nitrógeno molecular.

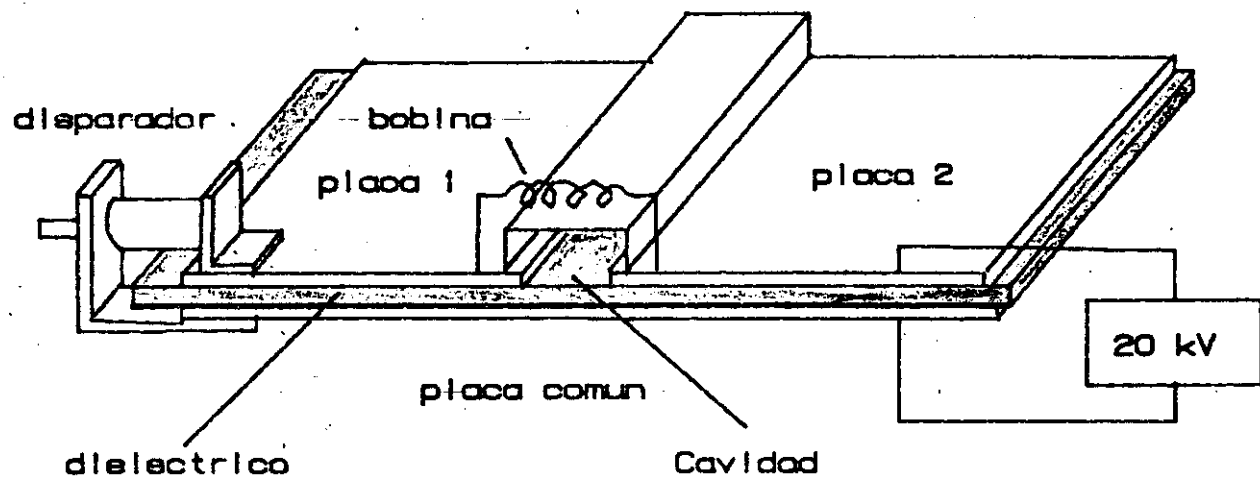


Figura 4.3
Diagrama del circuito de excitación del laser de N_2 .

4.2 El laser de pigmento.

4.2.1 El medio activo.

El laser de pigmento opera en la transición del primer estado electrónico excitado al estado base electrónico de las moléculas de pigmentos orgánicos en solución. Como ya se mencionó, los pigmentos son moléculas

orgánicas con enlaces dobles conjugados; los enlaces sencillos son enlaces σ y los enlaces dobles constan de un enlace σ y un enlace π . Los electrones π se caracterizan por funciones de onda con un nodo en el núcleo y con simetría rotacional a lo largo de una línea que pasa por el núcleo y es normal al plano subtendido por los orbitales de los tres electrones σ del carbono.

Los espectros de absorción de los pigmentos pueden explicarse a un nivel semicuantitativo en base a un modelo muy simple: Todos los átomos de la cadena conjugada de la molécula de pigmento están contenidos en un mismo plano y unidos por enlaces σ , mientras que los electrones π tienen un nodo en el plano de la molécula y forman una nube cargada arriba y abajo de este plano, a lo largo de toda la cadena conjugada. Así, el potencial electrostático que sienten los electrones π se puede considerar en primera aproximación como constante en la longitud L de la molécula; es decir, que los electrones se mueven en un pozo de potencial de ancho L . La solución para este potencial es un conjunto de niveles con energías E_n dadas por [4]:

$$E_n = \frac{n^2 h^2}{8mL^2} ; \quad n=0,1,2,\dots \quad (4.1)$$

De acuerdo al principio de exclusión de Pauli, cada estado solo puede estar ocupado por dos electrones. Así, si tenemos N electrones, los primeros $N/2$ estados estarán llenos, con dos electrones cada uno y todos los estados superiores estarán vacíos. La absorción de un fotón de energía $\Delta E = hc/\lambda$ lleva un electrón de un estado ocupado a un estado vacío. La banda de absorción de mayor longitud de onda corresponde a la transición desde el estado ocupado más alto al estado vacío más bajo, lo que de acuerdo a (4.1) corresponde a un cambio de energía:

$$\Delta E_{\min} = \frac{h^2}{8mL^2} (N+1) \quad \text{ó} \quad \lambda_{\max} = \frac{8mc}{h} \frac{L^2}{N+1} \quad (4.2)$$

Esto indica que a primera aproximación la posición de la banda de absorción de un pigmento esta determinada solo por la longitud de la cadena y del numero de electrones π que contiene. Este modelo, llamado de gas de electrones libres, aunque sencillo, produce valores de los máximos de absorción que concuerdan con los valores experimentales para varios pigmentos [4]. Por otro lado, debido a que una molécula típica de pigmento puede tener 50 o más átomos, se tendrá un gran número de modos de vibración. Las vibraciones de la molécula tienen como efecto el cambiar la longitud L en una cantidad pequeña, por lo que cada estado vibracional tendrá una energía ligeramente diferente a E_n . Esto se traduce en un desdoblamiento de cada nivel excitado a un gran numero de subniveles. Las rotaciones producirán cambios aún mas pequeños en la energía, convirtiendo en realidad el nivel original a un cuasi continuo. Finalmente, las colisiones con las moléculas del solvente permiten considerar a la banda de niveles como un continuo. Esto explica la gran anchura de las bandas de absorción de los pigmentos, típicamente del orden de 50 nm, como se muestra en la figura 4.4. Esta gran anchura es lo que permite lograr lacapacidad de sintonia, aspecto fundamental de estos láseres.

Otro factor decisivo en la forma del espectro es el spin deelectron. Las moléculas de pigmento contienen un número par deelectrones, de modo que el estado base tendrá spin total $S=0$ y será por tanto un singulete. Sin embargo, si llevamos un electrón a un estado excitado, existen dos posibilidades: una, que el electrón se encuentre con spin antiparalelo al spin del electrón con que se hallaba apareado, resultando un estado con $S=0$; la otra posibilidad es que ambos sean ahora paralelos, dando un estado con $S=1$. El spin resultante $S=1$ se puede acomodar ya sea paralelo,

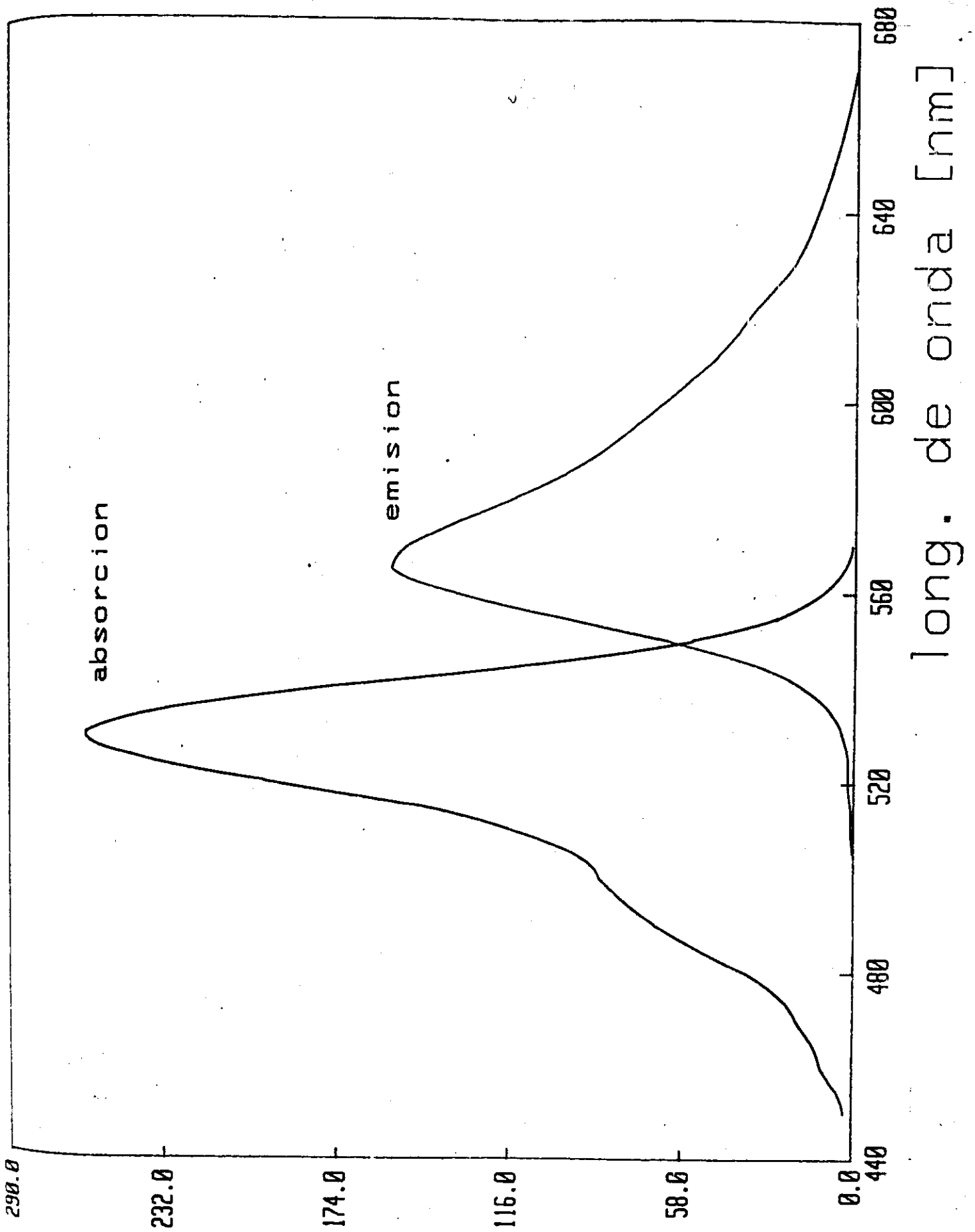


Figura 4.4
 Curvas de absorcion y emision de la Rodamina 6G en solucion
 5×10^{-3} Molar en etanol. La escala vertical indica el coeficiente

antiparalelo u ortogonal con respecto a un campo magnético externo, por lo que estos estados serán tripletes. Debido a esto, la estructura de niveles de los pigmentos se dividirá en dos ramas una de estados singuletes S_n , y otra de tripletes T_n . El modelo de electrones libres tambien provee una explicación simple de cual es la posición de los niveles tripletes respecto a los singuletes. En general, los niveles T_n tendran energías menores que las de los niveles S_n correspondientes [4]. Las transiciones radiativas entre niveles singulete y triplete son fuertemente prohibidas por la regla de selección de spin que pide $\Delta S=0$ para una transición.

Al irradiar la solución con luz de longitud de onda apropiada, por un sistema óptico de bombeo, se logra excitarlo a alguno de los niveles vibracionales del primer estado excitado S_1 , el cual decae, no radiativamente, a su nivel vibracional mas bajo en un tiempo muy corto, del orden de 10^{-12} s. De aqui el electrón decae espontaneamente a un nivel vibracional excitado del estado base S_0 , con una vida media del orden de 10^{-9} s, a esta emisión se le llama fluorescencia. Finalmente el electrón decaerá no radiativamente y otra vez muy rapido (tambien del orden de 10^{-12} s) hacia el nivel vibracional mas bajo de S_0 (figura 4.5b). Existe tambien la posibilidad de transiciones entre los niveles S_1 y T_1 , inducida por colisiones, como la transición radiativa $T_1 \rightarrow S_0$ es prohibida, el nivel T_1 será metaestable y su emisión es de vida media muy larga (entre 1 μ s y 1 segundo), la cual se conoce como fosforescencia. Las lineas de emisión de fluorescencia serán entonces muy anchas y corridas hacia el rojo de sus correspondientes lineas de absorción, por lo que cabe notar que dada una longitud de onda de bombeo, solo se puede obtener láser en longitudes de onda mayores a esta. Las características espectroscópicas antes mencionadas, sugieren la posibilidad de usar la emisión fluorescente de los pigmentos como un medio láser de cuatro niveles. En estos, el

bombeo eleva a las moléculas desde su estado base $|0\rangle$ muy poblado, a un estado excitado $|3\rangle$ que decae rápidamente (en este caso de forma no radiativa) a otro nivel vibracional $|2\rangle$. El nivel $|2\rangle$ tiene una transición radiativa a un cuarto nivel $|1\rangle$ y este a su vez decae no radiativamente y muy rápido al estado base (con una vida media menor a la de $|2\rangle$). Podemos entonces, mediante el bombeo, establecer una inversión de población entre los niveles $|2\rangle$ y $|1\rangle$ y usar la transición entre ellos para generar radiación láser, figura 4.5a.

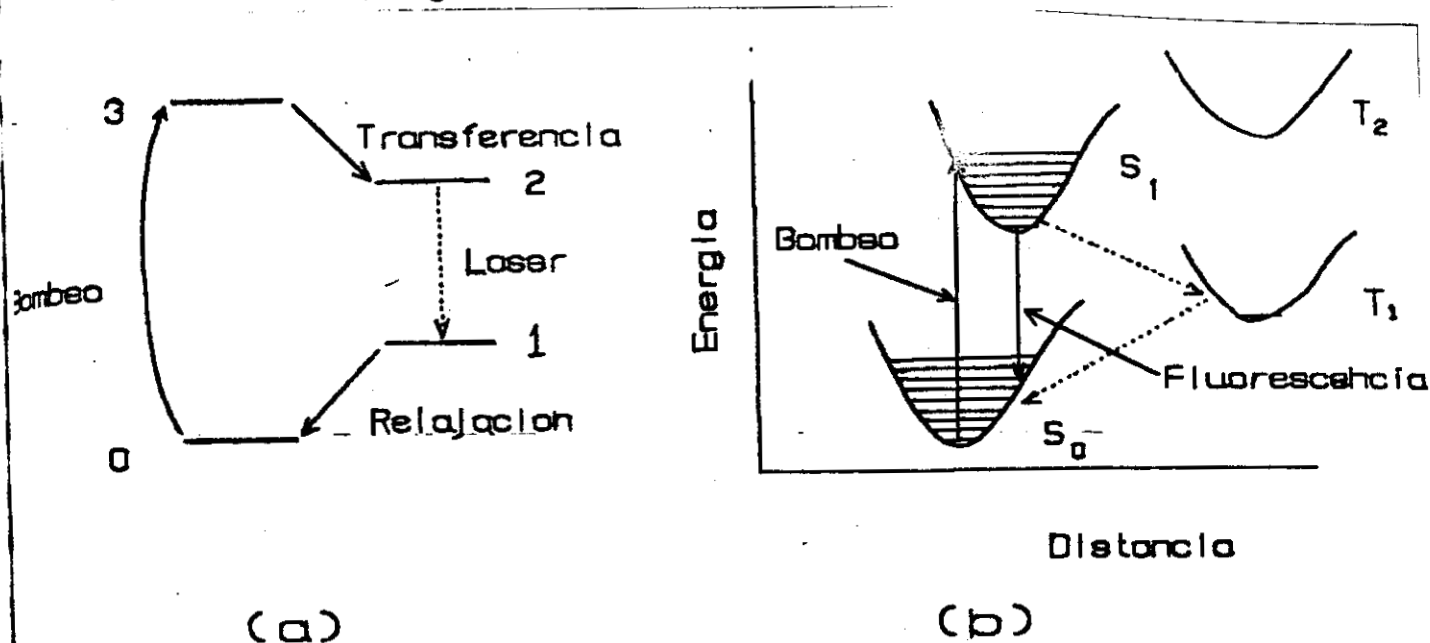


Figura 4.5
 a) Esquema de operación de un láser de cuatro niveles,
 b) Diagrama de niveles de una molécula de pigmento orgánico.

El pigmento utilizado en nuestro láser es la *Rodamina 6G* (perclorato, P.M. de 479 g/mol), marca Exciton, el cual se encuentra en solución 5×10^{-3} Molar en etanol. La solución se encuentra contenida en una celda de flujo, hecha de cuarzo, cuyas dimensiones son $1 \times 1 \times 5$ cm. La celda está conectada a un sistema de circulación consistente en un bomba centrífuga de teflón de acoplamiento magnético y flujo variable, marca Cole-Palmer, un matraz Erlenmeyer de 150 cc de capacidad y manguera de silicón para conectar el sistema bomba-matriz-celda. El haz de bombeo, como ya se mencionó, es

proporcionado por un láser de nitrógeno molecular. Dicho haz se enfoca sobre la celda que contiene la solución de pigmento mediante una lente cilíndrica de cuarzo de 7.5 cm de distancia focal, para producir un volumen de excitación en forma de una franja delgada.

4.2.2 La cavidad resonante.

Debido a que las curvas de emisión de los pigmentos son muy anchas, al usarlos en un láser con una cavidad convencional, se produce luz de una pureza espectral muy baja. Para producir una emisión de mayor coherencia, es necesario construir una cavidad que sea muy selectiva en frecuencia. La selección en frecuencia se lleva a cabo por un elemento intracavidad cuya absorción, dispersión o difracción dependa fuertemente de la frecuencia. Para este propósito se han utilizado absorbedores, prismas y rejillas de difracción en una variedad de montajes que además requieren ocasionalmente de elementos expansores [4,5].

La configuración escogida para nuestro láser del tipo "Littman-Metcalf" [6]. En esta, el haz de fluorescencia producido por el pigmento se hace incidir sobre una rejilla de difracción en ángulo rasante, de forma que el haz la cubra totalmente, eliminando así la necesidad de un elemento expansor (figura 4.6). La separación entre líneas de la rejilla debe ser la adecuada para obtener máxima resolución en frecuencia y con una inclinación (*blaze*) adecuado para máxima eficiencia de difracción. Estas condiciones para rejillas fabricadas para máxima eficiencia en ángulo rasante, tienen un máximo cuando el primer haz difractado es más o menos perpendicular al plano de la rejilla. Se coloca un espejo aproximadamente paralelo a la rejilla (denominado sintonizador), de modo que solo la porción de frecuencias de la luz que haya sido difractada perpendicularmente al espejo regrese por la misma trayectoria.

Es importante notar que en esta configuración la luz es difractada dos veces en cada vuelta. La cavidad se completa con un espejo plano que retro refleje el haz que sale en la otra dirección de la celda que contiene al pigmento. El acoplamiento se realiza utilizando el orden cero de la rejilla y la selección en frecuencia se realiza rotando el espejo sintonizador.

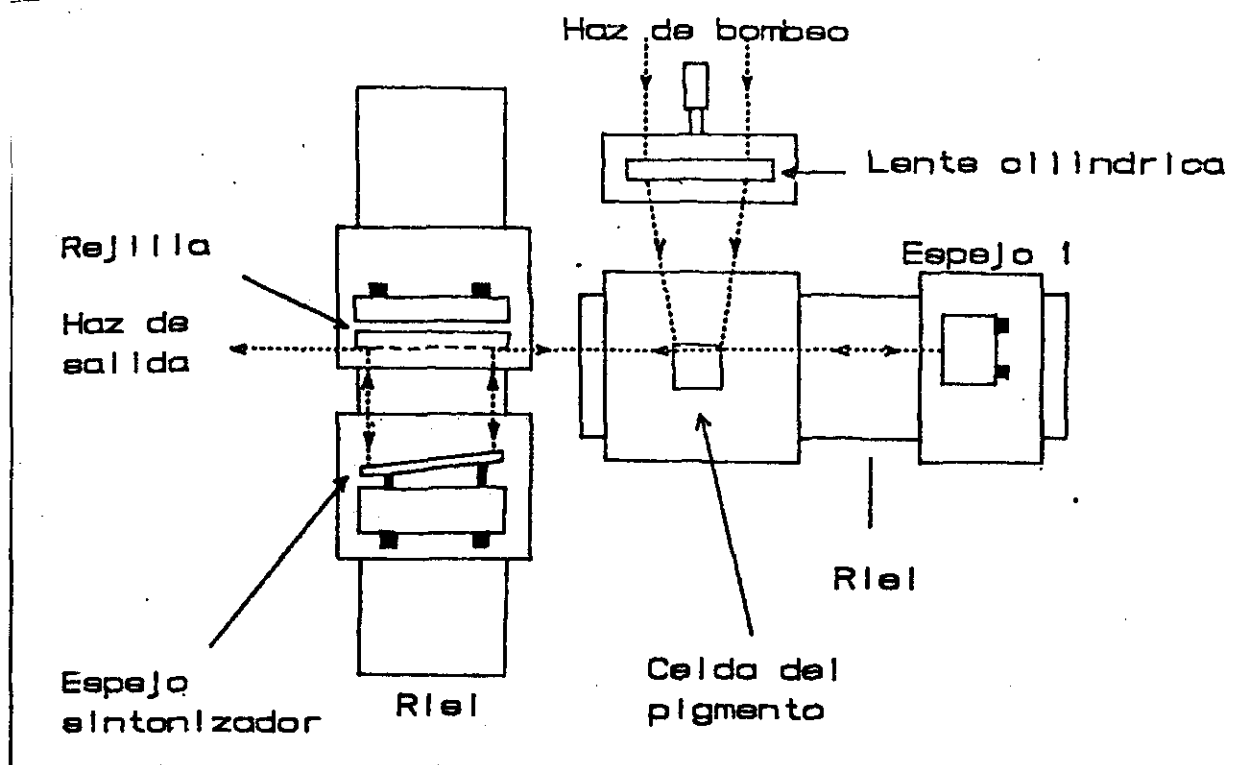


Figura 4.6
Esquema de la cavidad del láser de pigmento.

Una característica importante de estos sistemas es que gracias a que el ensanchamiento de las líneas de emisión de los pigmentos es homogéneo, la población invertida puede ser utilizada en su totalidad para producir láser en cualquier longitud de onda dentro del ancho de emisión, lo que resulta en eficiencias de operación altas.

Para formar la cavidad de nuestro láser se utilizó una rejilla de difracción holográfica de 2400 líneas por mm. Los espejos utilizados son metálicos de primera superficie, planos hasta un décimo de la longitud de onda; el espejo sintonizador es de 2 pulgadas de diámetro y el otro es de

1 pulgada.

Las características del láser de pigmento se resumen en la tabla 4.2.

Frecuencia de repetición	1 Hz
Rango de sintonía	570-600 nm
Ancho de banda	0.04 nm
Energía por pulso	100 μ J
Potencia pico del pulso	12 kW
Duración del pulso	6 ns
Divergencia del haz	3 mrad

TABLA 4.2
Características del laser de pigmento (Rodamina 6G).

4.3 El cristal de ADP.

Los cristales de ADP fueron crecidos en el CICESE de Ensenada Baja California, por el M. en C. Manuel Yamada, utilizando la técnica de evaporación en solución acuosa [7]. La temperatura de crecimiento fué de 38° C, con estabilización de $\pm 0.01^\circ$ C. La razón de crecimiento fué de 2 mm diarios, al mantener una velocidad solución-cristal de 20 cm/seg.

El equipo de crecimiento consta de un baño de temperatura constante de 30 litros, un recipiente de crecimiento de 4 litros, un sistema de agitación de semillas, un controlador marca Tronac modelo TPC-41, un termómetro diferencial y un sistema de monitoreo de temperatura con sensor de termistor y multímetro.

Se utilizó sal de ADP ($\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$) de la compañía Baker con pureza de 99.99 % que fue recristalizada y filtrada en el laboratorio, usando agua triplemente destilada.

El crecimiento se inició con la preparación de las semillas

introducidas en una solución supersaturada con pH=8, esta modificación es necesaria para obtener un rápido aumento en el tamaño de las caras laterales (100) del cristal. Cuando las semillas tenían una dimensión de 2.5 cm se extrajeron y se introdujeron en el sistema de crecimiento con la solución supersaturada normal (pH=6) en donde en esencia crecen en la dirección z hasta alcanzar su longitud final. El resultado es un cristal transparente desde el cercano IR hasta el cercano UV y birrefringente (uniaxial negativo, con celda unitaria tetragonal clase $\bar{4}2m$), cuyas dimensiones son 2.5 cm x 2.5 cm x 9 cm.

El cristal se cortó de manera que al hacer incidir un haz en la dirección normal a su superficie, este se encontrara en la dirección de acoplamiento de fase θ_m . En el corte también se tomó en cuenta la estructura del tensor de susceptibilidad no lineal del cristal. Tal como se señala en el apéndice B, la cantidad que juega un papel relevante es el coeficiente d_{ef} . Para el grupo de simetría al que pertenece el ADP, los únicos elementos de $\chi^{(2)}$ diferentes de cero son χ_{xvz} y χ_{zxy} y el coeficiente no lineal efectivo, dado por (B.12) es:

$$d_{ef} = -\chi_{36} \sin 2\theta_r \sin \theta_m \quad (B.12)$$

donde θ_r es el ángulo que forman el eje y del cristal cortado y el eje X del cristal natural, tal como se muestra en la figura 4.7. De esta expresión es evidente que dicho coeficiente no lineal efectivo es máximo cuando $\theta_r = 45^\circ$.

Para hacer el cálculo del ángulo θ_m de acuerdo a la ecuación (2.28), para una longitud de onda arbitraria, necesitamos información de la dispersión del ADP. Los índices de refracción del ADP como función de la longitud de onda se pueden ajustar a una función de la forma [8]:

$$n^2 = A + \frac{B \nu^2}{(1-\nu^2/C)} + \frac{D}{(E-\nu^2)} \quad (4.3)$$

con la frecuencia $\nu=1/\lambda$ en cm^{-1} , las constantes A, B, C, D y E son diferentes para los índices ordinario y extraordinario y se encuentran tabuladas en la Tabla 4.3, la figura 4.8 ilustra el ajuste que se obtuvo de la ecuación (4.3). El eje óptico se identificó a partir de la forma macroscópica del cristal así como con la localización de los rayos ordinario y extraordinario con un láser de He Ne y polarizadores. Por las razones antes expuestas, el corte se realizó en la dirección deseada ($\theta_m=63^\circ 57'$, para $\lambda = 5925 \text{ \AA}$ y $\theta_r=45^\circ$) con una cortadora de disco, provista de un goniómetro que permite medir el ángulo de corte con una precisión de 0.5° . Las caras del cristal fueron posteriormente pulidas, resultando un cristal de 5.2 mm de espesor.

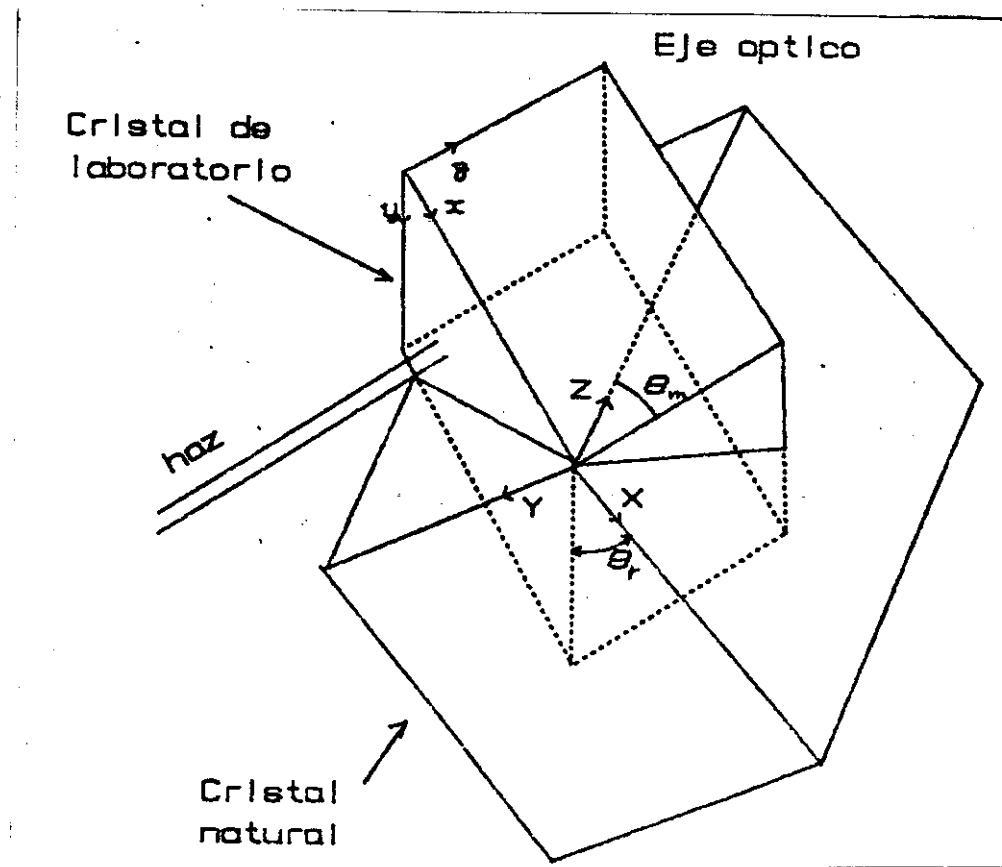
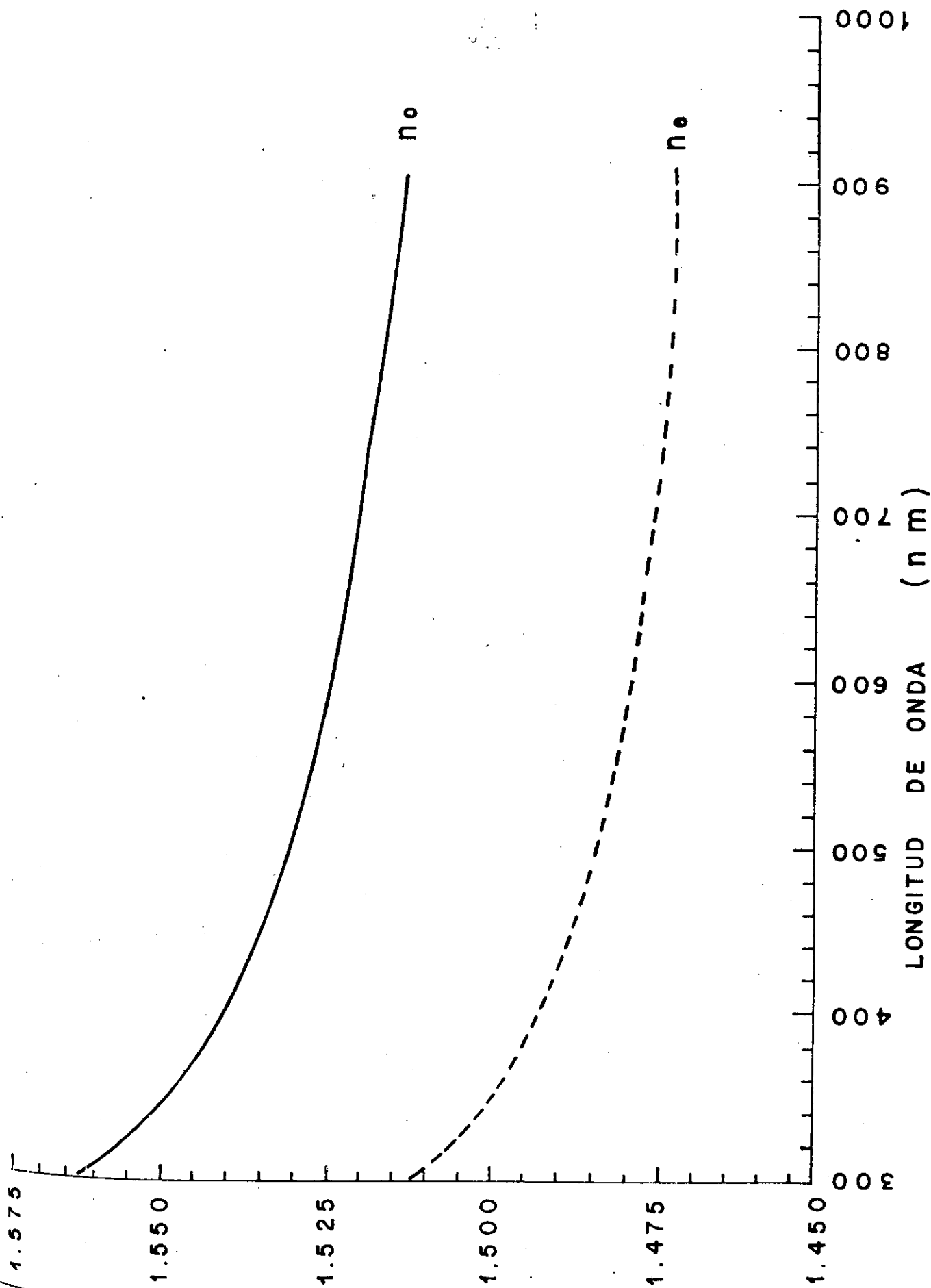


Figura 4.7

Diagrama que muestra la relación entre el cristal cortado (de laboratorio) y el cristal natural. Se muestra también la relación entre las coordenadas x y z y XYZ .

Índices de refracción n_o y n_e del ADP



En el dispositivo el cristal esta inmerso en aceite mineral (tambien conocido como vaselina líquida), el cual tiene un índice de refracción semejante al de este ($n_{\text{aceite}} = 1.4673$). El líquido esta contenido en un recipiente de plexiglas (4 x 4 x 4 cm) con ventanas de cuarzo (de 1 pulgada de diámetro), por las que pasan el haz fundamental y su armónico; se usó cuarzo debido a su transparencia en la longitud de onda del segundo armónico, que se encuentra en el UV. Se escogió este montaje para eliminar los cambios de dirección del haz en las interfaces aire-cristal, así como para minimizar las pérdidas de energía por reflexiones en ellas. Se evita también la absorción de agua por el cristal, el cual es higroscópico.

	Rayo ordinario	Rayo extraordinario
A	2.302842	2.163510
B	$1.1125165 \times 10^{-10}$	9.616676×10^{-11}
C	7.5450861×10^9	7.698751×10^9
D	3.7756160×10^6	1.479974×10^6
E	2.50×10^5	2.50×10^5

TABLA 4.3
Valores de las constantes A, B, C, D y E de (4.3)
para el ADP. según referencia 7.

Esta celda esta montada en un goniometro de alta precisión, de manera que el cristal se puede girar independientemente de la base con una precisión de 1' de arco.

A la salida del cristal de ADP el haz armónico y lo que resta del haz fundamental salen en la misma dirección, por lo que para observar el primero hay que separarlo del fundamental. Para lograr esto se utiliza un filtro de absorción marca Oriel tipo U-330, que bloquea al haz fundamental (visible) y que es transparente al armónico (UV).

4.4 Deteccion.

Para medir la energía por pulso tanto del láser de nitrógeno como del láser de pigmento se utilizó un detector piroeléctrico marca Gentec, modelo ED-100. Para observar la evolución temporal de los pulsos generados por ambos láseres, así como el segundo armónico producido, se utilizó un fotodiodo tipo PIN ultrarrápido, marca Hamamatsu modelo S1722-02 sensible al UV. La señal generada por el detector se visualiza en un osciloscopio de 300 MHz de ancho de banda marca Tektronix modelo 485. El tiempo de respuesta de todo el sistema electrónico es de 1 ns.

La longitud de onda de las diversas señales presentes se determinaron con un monocromador tipo Czerny-Turner de 0.47 m de distancia focal, marca Pacific, el cual reporta una resolución de menos de 0.1 nm para una rendija de entrada de 10 μm de ancho.

Referencias del capítulo 4.

- 1.- Willett C.S., "Introduction to gas lasers: population inversion mechanisms", cap. 6, Pergamon Press, 1974.
- 2.- Lambda Physik, Panfleto comercial, Göttingen 1984.
- 3.- Cudney, R.B., "Diseño y construcción de un laser de pigmento", Tesis de Licenciatura en Física, UNAM, 1986.
- 4.- Schäfer, F.P., "Dye Lasers", Ed. Springer-Verlag, 1977.
- 5.- Schäfer, F.P., en "Lasers: Physics, Systems and Techniques", Proceedings of 23th. SUSSP, ed. por W.J. Firth y R.G. Harrison, 1982.
- 6.- Littman M. y H. Metcalf, *Appl. Opt.* 17, 2224 (1978).
- 7.- Yamada, M. et al, "Cristales electro-ópticos de ADP: tecnica de evaporación para su crecimiento", Memoria del duodécimo Congreso de la Academia Nacional de Ingeniería, Septiembre 1986.
- 8.- Zernike F., *J. Opt. Soc. Am.* 54, 1215 (1964) y la errata en: *J. Opt. Soc. Am.* 55, 210 (1965).

Generacion de segundo armonico en un cristal de ADP. Experimentos.

El propósito general de los experimentos realizados es la obtención de una fuente monocromática coherente sintonizable en el UV tratando de optimizar los parámetros experimentales para lograr la máxima eficiencia de conversión de luz visible a ultravioleta.

Para obtener una caracterización completa de nuestro sistema, se hicieron los experimentos correspondientes para verificar algunas de las predicciones teóricas descritas en el capítulo 2.

5.1 Alineacion del cristal.

Como ya se mencionó, el cristal de ADP se encuentra acoplado a un goniómetro que permite controlar el ángulo de incidencia del haz sobre el cristal. El cristal se coloca de tal forma que al girarlo, el eje de giro del cristal sea perpendicular al eje óptico, es decir que dicho giro describe un círculo horizontal. El montaje, por medio de la base del goniómetro, permite también un ligero ajuste de rotación en el plano perpendicular a la dirección de incidencia. Este sistema tiene la ventaja de que al hacer incidir el láser con una polarización lineal paralela al eje de giro, este siempre entrará como un haz ordinario únicamente, independientemente del ángulo de giro, condición necesaria para máxima eficiencia, como se puede ver de la ecuación (2.25).

El proceso de alineación del cristal para la obtención del segundo armónico es el siguiente:

- 1.- Se coloca el cristal de manera que el haz incida en sobre sus caras en forma aproximadamente normal.
- 2.- Se coloca la lente de enfoque del haz fundamental tal que el foco

quede en el centro del cristal.

3.- Después de la celda se coloca un filtro que bloquea el haz fundamental (visible) pero permite el paso del segundo armónico (UV), colocándose posteriormente una tarjeta fluorescente.

4.- Se realiza un barrido en ángulo alrededor de la posición inicial hasta observar la fluorescencia en la tarjeta provocada por el segundo armónico.

5.- Por último, se sustituye la tarjeta por el fotodetector y se corrige la posición de la lente y el ángulo del cristal para lograr la máxima eficiencia de conversión posible.

5.2 La eficiencia de conversión.

Un parámetro importante en la producción del segundo armónico es la eficiencia de conversión obtenida, ya que esta determina la potencia en el UV disponible.

5.2.1 Eficiencia experimental.

Puesto que el fotodetector utilizado no está calibrado para medir energías por pulso, se midió la intensidad en unidades arbitrarias y se comparó con la medida obtenida en esas mismas unidades para los pulsos del láser, para los cuales sí se tiene una medida de su energía, obtenido por medio del detector piroeléctrico. Las medidas se llevaron a cabo para $\lambda = 582.17$ nm, lo que corresponde a una longitud de onda del segundo armónico $\lambda^{(2\omega)} = 291.09$ nm. Debido a que la intensidad del láser de pigmento es lo suficientemente alta para saturar el detector, se utilizó un filtro de densidad neutral D.N. = 2 para atenuarlo. La D.N. se define como:

$$D.N. = \log_{10} \left(\frac{1}{T} \right) \quad \text{o bien} \quad T = 10^{-ND} \quad (5.1)$$

donde T es la transmitancia del filtro.

EL resultado del experimento fue:

$$I_{\omega} \text{ (atenuado)} = 8; \text{ lo que corresponde a } I_{\omega} = 800; I_{2\omega} = 6$$

La eficiencia neta de conversión es, tomando en cuenta la respuesta diferencial del detector (Hamamatsu S-1722-02) para el fundamental y el armónico (3.5 : 1):

$$\eta_{\text{neta}} = 2.6 \% \quad (5.2)$$

Si consideramos la absorción sufrida por el armónico (en el UV) en el medio de inmersión ($T(291 \text{ nm}) = 76 \%$) y en el filtro que bloquea al haz fundamental ($T = 83 \%$), entonces la eficiencia de conversión inmediatamente a la salida del cristal es:

$$\eta_{\text{exp}} = 4.1 \% \quad (5.3)$$

El resultado es entonces una fuente láser con $\lambda = 291.09 \text{ nm}$ con una potencia pico de 433 W y con un ancho de banda menor a 0.04 nm .

Por comparación, una lámpara convencional de monocromador produce 200 W de potencia óptica en 600 nm de ancho (del UV al visible). Suponiendo una respuesta plana y sin incluir pérdidas en el monocromador, la potencia es de 13 mW en un ancho de 0.04 nm . El haz generado por medio del segundo armónico del láser de pigmento, tiene entonces una potencia pico 4 ordenes de magnitud mayor por unidad de frecuencia.

5.2.2 Eficiencia teorica.

En vista de que usamos un haz enfocado para el doblamiento de frecuencia, para comparar nuestros resultados con la teoría, es necesario caracterizar primero las condiciones de enfoque del haz.

5.2.2.1 Condiciones de enfoque.

Como se dedujo en la sección 2.4, para una potencia del láser y una

longitud del cristal fijas; la eficiencia máxima de conversión se da cuando las condiciones de enfocamiento cumplen (2.50). En nuestro montaje, tenemos un haz con radio w_1 al incidir sobre una lente de distancia focal f y que se enfoca sobre el cristal de espesor L , el cual se encuentra a una distancia d de la lente, como muestra la figura 4.7. Los valores experimentales de estos parámetros son:

$$w_1 = 0.175 \pm 0.010 \text{ cm}; f = 7.5 \text{ cm}; d = 9.5 \pm 0.5 \text{ cm};$$

$$L = 0.50 \pm 0.01 \text{ cm} \quad \lambda = 582.17 \pm 0.02 \text{ nm} \quad (5.4)$$

Por tanto el haz resultante tiene una cintura w_0 en el foco y un rango de Rayleigh z_0 dados por [1]:

$$w_0 = \frac{\lambda d}{\pi w_1} \quad (5.5)$$

$$z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (5.6)$$

por lo tanto

$$\xi = \frac{L}{2z_0} = 4.58 \quad (5.7)$$

Esto significa que el enfoque utilizad  se desvia un poco del valor  ptimo dado por la ecuaci n (2.48) que es de 5.68. Notese que la distancia de la lente al plano focal d (colocado en el centro del cristal) no coincide con la distancia focal f de la lente debido a que el haz se propaga en un medio con  ndice de refracci n mayor. Considerando que despu s de la lente, el haz viaja 5.5 cm en el aire ($n=1$) y posteriormente en el l quido y el cristal con  ndice de refracci n $n_2=1.4673$, as , la distancia $d = \sum_1 n_1 f_1 = 5.5 n_1 + 2.0 n_2$, donde la distancia focal f estada dada por la suma de las f_1 y por tanto, $d = 8.43$. Este resultado, aunado al hecho de que el haz es ligeramente divergente, resuelve la discrepancia antes mencionada. Por otro lado, si nos preguntamos por la distancia focal de la lente que nos da $\xi=5.68$ exactamente, al usar (5.7) vemos que

necesitamos tener $\gamma_0 = 0.044$ cm, y por tanto $d = 8.5$ cm. Al tomar en cuenta otra vez el factor de corrección por los índices de refracción diferentes, obtenemos que $f = 7.55$ cm para tener el enfocamiento óptimo.

Sin embargo, se probaron otras lentes de distancia focal diferente ($f = 9.0$ cm y $f = 15$ cm) y se vió cualitativamente que las condiciones antes reportadas resultaban en la mayor eficiencia obtenible, de acuerdo a la predicción teórica.

5.2.2.2 Calculo teorico.

Podemos usar la expresión (2.45) para hacer una estimación teórica de la eficiencia de conversión lograble. Un dato importante en este cálculo, es el coeficiente no lineal d_{36} del ADP. Existen distintos valores experimentales de d_{36} reportados [2-4], y todos ellos coinciden bastante bien. Nosotros usaremos el valor reportado en [2] por haber sido obtenido para una longitud de onda cercana al rango utilizado en nuestro experimento:

$$d_{36} = 5.0 \times 10^{-24} \frac{\text{C}^3}{\text{J}^2} \quad (5.8)$$

Los valores numéricos de las constantes involucradas en (2.45), en las condiciones experimentales son:

$$\omega = \frac{2\pi c}{\lambda} = 3.236 \times 10^{15} \text{ Hz} \quad (5.9)$$

$$d_{\text{ef}} = d_{36} \sin 2\theta_r \sin \theta_m = 4.509 \times 10^{-24} \frac{\text{C}^3}{\text{J}^2} \quad (5.10)$$

(para $\theta_r = 45^\circ$ y $\theta_m = 64^\circ 29'$)

$$n(\omega) = 1.525 \quad (5.11)$$

$$\left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{1/2} = 377 \ \Omega = 377 \frac{\text{Vs}}{\text{C}} \quad (5.12)$$

$$c = 2.9979 \times 10^8 \text{ m/s} \quad (5.13)$$

con esto:

$$P^{(2\omega)} = 1.2062 \times 10^{-4} [P^{(\omega)}]^2 \quad (5.14)$$

o bien:

$$\frac{P^{(2\omega)}}{P^{(\omega)}} = 1.2062 \times 10^{-4} P^{(\omega)} \quad (5.15)$$

El láser enfocado tiene un semiángulo de divergencia δ_0 dado por:

$$\delta_0 = \frac{u_s}{d} = 0.018 \text{ rad} \quad (5.16)$$

Por otro lado el cristal tiene una tolerancia angular $\delta\theta$ dada por (2.35), que para las condiciones experimentales toma el valor:

$$\delta\theta = 0.0014 \text{ rad} \quad (5.17)$$

Así, si consideramos que la potencia disponible para la generación del segundo armónico es la fracción de la potencia total del láser que se encuentra dentro del ángulo de tolerancia $\delta\theta$, ésta será:

$$P^{(\omega)} = \frac{E \delta\theta}{\Delta t \delta_0}$$

con E la energía del pulso y Δt su duración. De la tabla 4.2:

$$E = 100 \mu\text{J} \text{ y } \Delta t = 6 \text{ ns, por lo que: } P^{(\omega)} = 1.358 \times 10^3 \text{ W, y}$$

$$\eta_{\text{teo}} = 16 \% \quad (5.18)$$

El cálculo de este valor involucra al valor absoluto de la energía por pulso, como es bien conocido, las medidas absolutas de energía óptica tienen gran incertidumbre inclusive en sus patrones primarios; nuestro detector, cuya calibración fue hecha en fábrica con un patrón secundario, tiene una incertidumbre de cerca del 50%. Aunado a esto, el recubrimiento absorbente de dicho detector piroeléctrico sufrió quemaduras por láser previas al experimento reportado. Por esta razón sustituimos el recubrimiento por una pintira negra mate absorbente, que obviamente cambió la calibración del instrumento. Tomando en cuenta estos factores, la diferencia entre el cálculo teórico y el experimental es aceptable.

Existen por lo menos otros dos factores que pueden haber influido en esta diferencia. Por un lado, el haz que produce el láser de pigmento, se

desvía del comportamiento gaussiano, debido principalmente a que se produce en una cavidad inestable en un régimen pulsado. Por otro lado, las caras del cristal no están perfectamente pulidas y la pérdida de energía por dispersión ("scattering") puede ser considerable.

5.2.3 Forma temporal del pulso.

La determinación de la eficiencia de conversión nos permite también determinar la evolución temporal del pulso. En la figura 5.1 se muestra la digitalización de una fotografía de osciloscopio del pulso del láser de pigmento. La duración del pulso medida a la mitad de la amplitud máxima (Full Width Half Maximum, FWHM) $\Delta\tau$ es de 5.9 ns y el tiempo de subida 10%-90% $\tau_s = 3.2$ ns aproximadamente. En la figura 5.2 se muestra el pulso del armónico, obtenido en condiciones similares. Este pulso muestra un tiempo de subida de 2.2 ns y una duración de 7 ns.

Estos resultados muestran que el τ_s del segundo armónico es menor al del fundamental, lo cual concuerda con el comportamiento esperado. En efecto, como el segundo armónico va como el cuadrado del fundamental, si asumimos una forma gaussiana para este, es posible demostrar que el tiempo de subida del primero debe ser menor a τ_s del fundamental por un factor de $1/\sqrt{2}$. El factor de reducción obtenido es de 0.687, que es bastante cercano al valor esperado. Debe recordarse que dichas mediciones están en el límite de resolución de la electrónica de detección.

Sin embargo, el ancho temporal del pulso también debería disminuir en el mismo factor, observándose lo contrario. No es clara la interpretación de este resultado, pero posiblemente se deba a la respuesta del fotodetector y su circuito asociado.

$m = 3.6 \text{ mrad}$ y esta corresponde a la tolerancia angular total $2\delta\theta$. En la figura 5.5 se muestran los puntos obtenidos y el ajuste logrado.

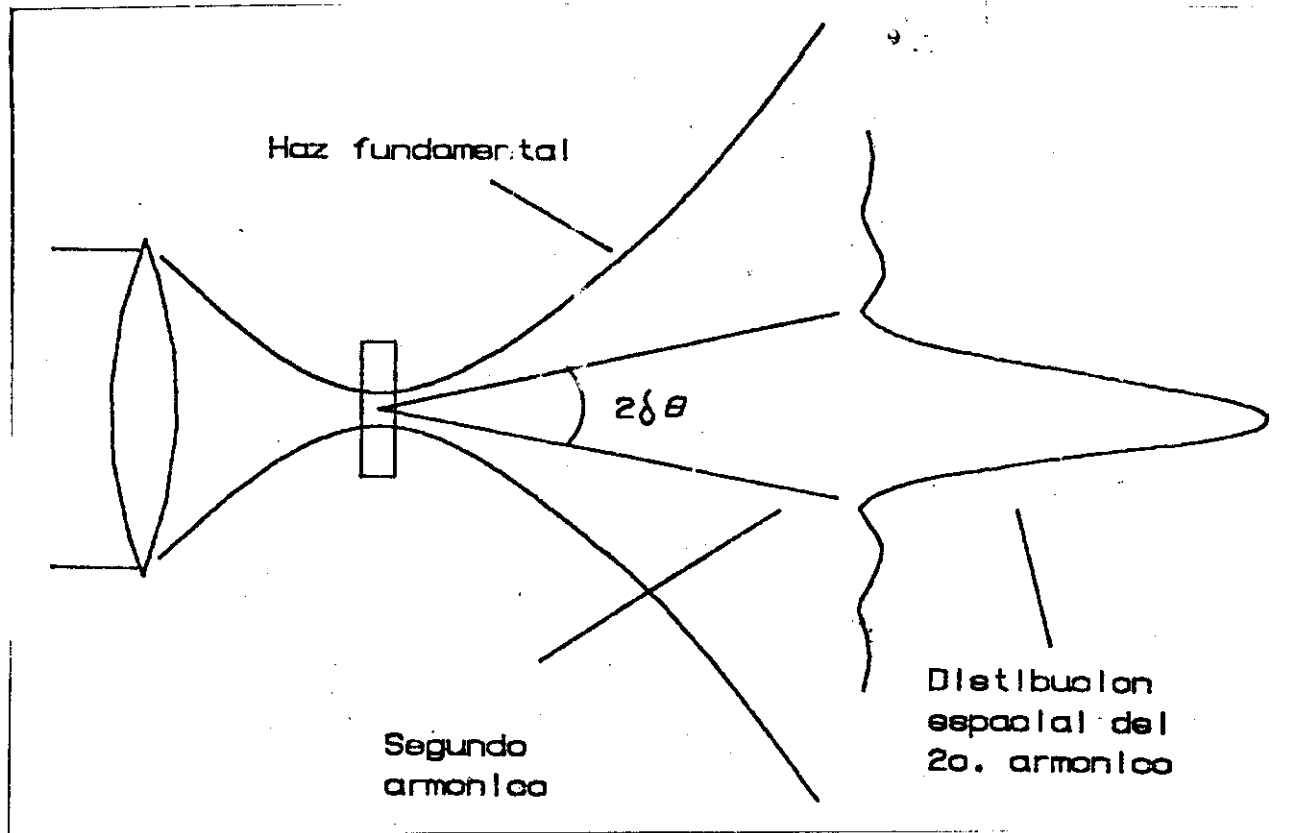


Figura 5.4
Distribucion espacial de energia del segundo armonico

Debido a que el cristal esta sumergido en un líquido con índice de refracción n_{liq} , necesitamos corregir el valor de $\delta\theta$ medido para tomar en cuenta el cambio de dirección que sufre el haz al pasar del líquido al aire. En la figura 5.6 se definen los parámetros relevantes. Utilizando la ley de Snell:

$$n_{liq} \text{ sen } \delta\theta_2 = n_{aire} \text{ sen } \delta\theta_1 \quad (5.19)$$

como $\delta\theta_1, \delta\theta_2 \ll 1$, podemos aproximar:

$$\text{sen } \delta\theta_1 \cong \delta\theta_1 \quad (5.20)$$

y entonces:

$$\delta\theta_2 = \frac{1}{n_{liq}} \delta\theta_1 \quad (5.21)$$

con $n_{liq} = 1.4673$ y $\delta\theta_1 = 1.8$ (del ajuste), resulta:

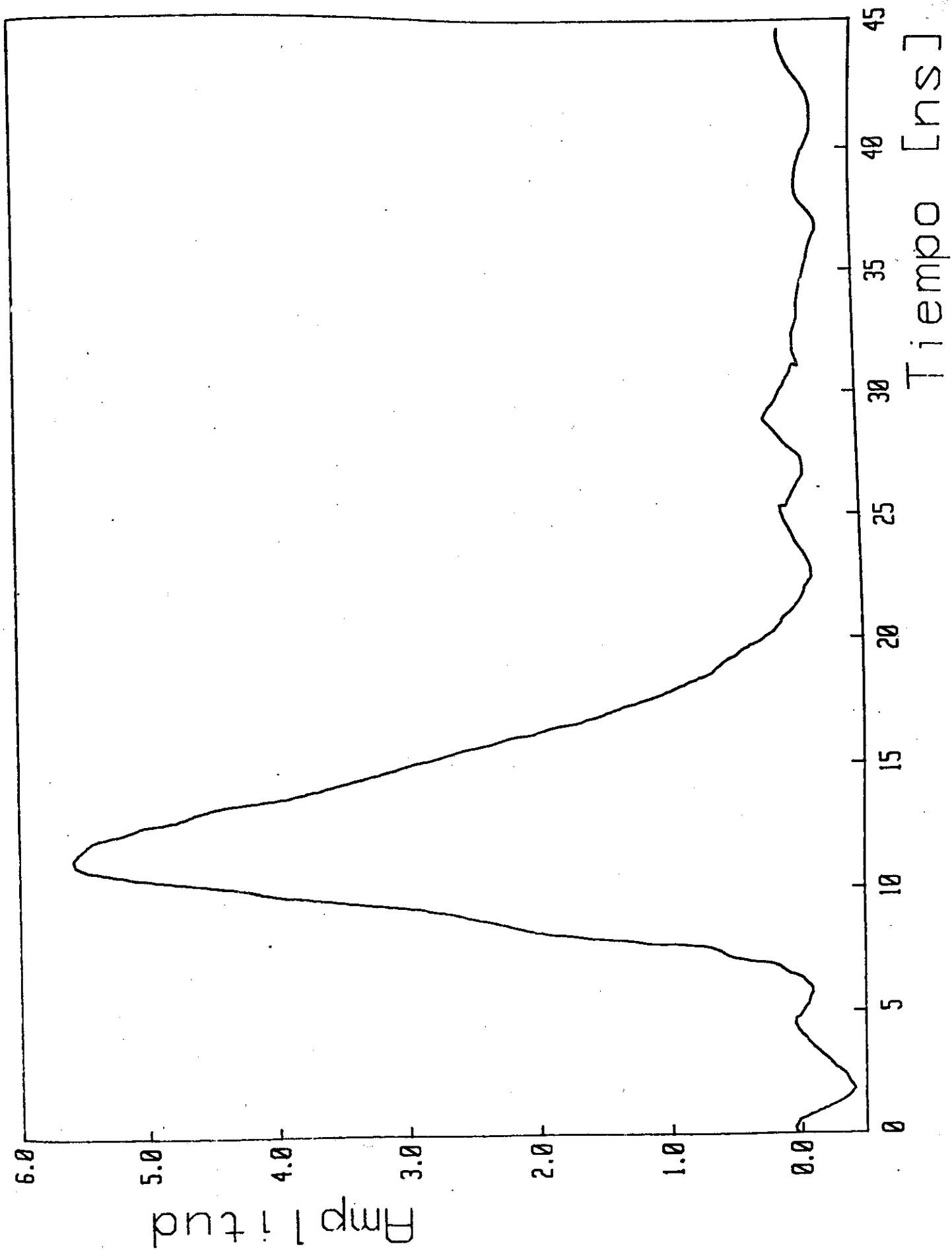


Figura 5.1

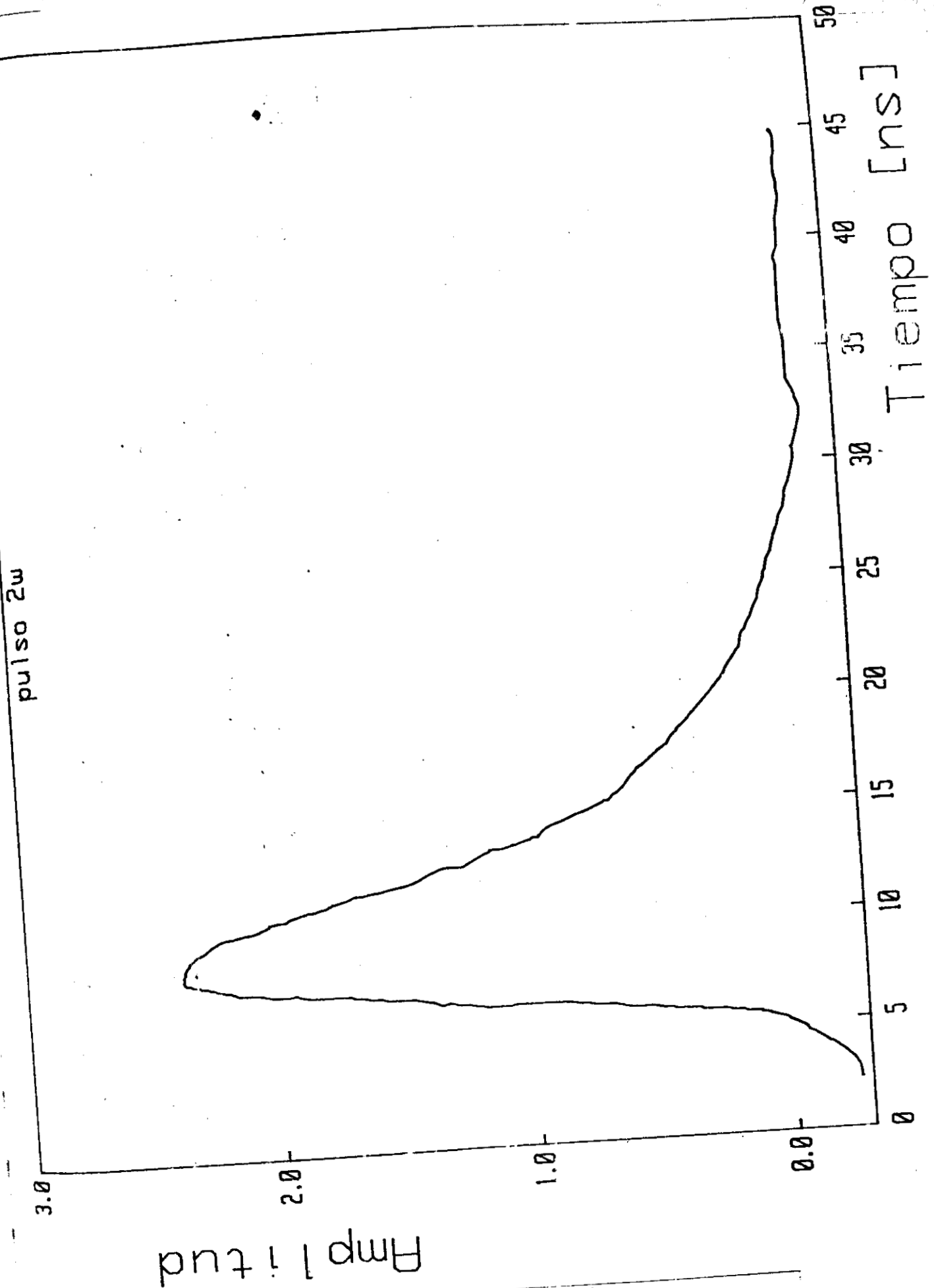


Figura 5.2
Evolucion temporal del pulso armonico (a 2ω)

5.3 Potencia de segundo armónico como función de la potencia de entrada.

La teoría predice que la potencia de segundo armónico depende cuadráticamente de la potencia fundamental, tanto para el caso de ondas planas, ecuación (2.22), como para el caso de haces enfocados, ecuación (2.45). Para comprobar esto medimos la potencia de segundo armónico para diferentes potencias de entrada, las que obtenemos atenuando el haz incidente con filtros de densidad neutral. Encontramos limitaciones en el rango de potencias en que podemos obtener buenas medidas de la potencia, ya que a potencias altas se observa saturación del detector, y a potencias bajas, el ruido electrónico producido por el láser de nitrógeno enmascara la señal.

Los resultados obtenidos se muestran en la figura 5.3, en la cual se muestra que los datos se ajustan bastante bien a una función cuadrática.

5.4 Divergencia angular del segundo armónico.

La teoría muestra que el segundo armónico solo se produce eficientemente para el rango de ángulos $\delta\theta$ con respecto al eje óptico alrededor de θ_m dado por (2.35). Por otro lado, la dependencia de la eficiencia con respecto al ángulo θ_r (ver figura 4.7), esta dada a través del coeficiente no lineal efectivo d_{ef} , por la expresión (B.12). Debido a que la restricción impuesta por el factor $\text{sinc}^2(\Delta kL/2)$ en la dirección horizontal es mas fuerte que la que proviene del factor $\cos 2\theta_r$ en la dirección vertical, cuando se detecta el segundo armónico con una tarjeta colocada en un plano perpendicular a la dirección de propagación del haz, este se ve como una banda larga y delgada. Cuando la intensidad del segundo armónico es lo suficientemente alta se puede observar un patron de franjas verticales claras y oscuras, características de los patrones de difracción. La explicación de la existencia de este patron es que al tener un haz enfocado, el cual se puede pensar como un conjunto de ondas planas

con diferentes direcciones de propagación, cada porción del haz tendrá un desfazamiento espacial Δk diferente. El segundo armónico que producirá cada porción, será proporcional al factor $\text{sinc}^2(\Delta k L/2)$. Entonces, la distribución espacial de energía del segundo armónico estará modulado por este factor, como muestra la figura 5.4. Además, la divergencia angular del haz en la dirección y , estará relacionada directamente con la tolerancia angular del cristal, como se muestra también en la fig 5.4.

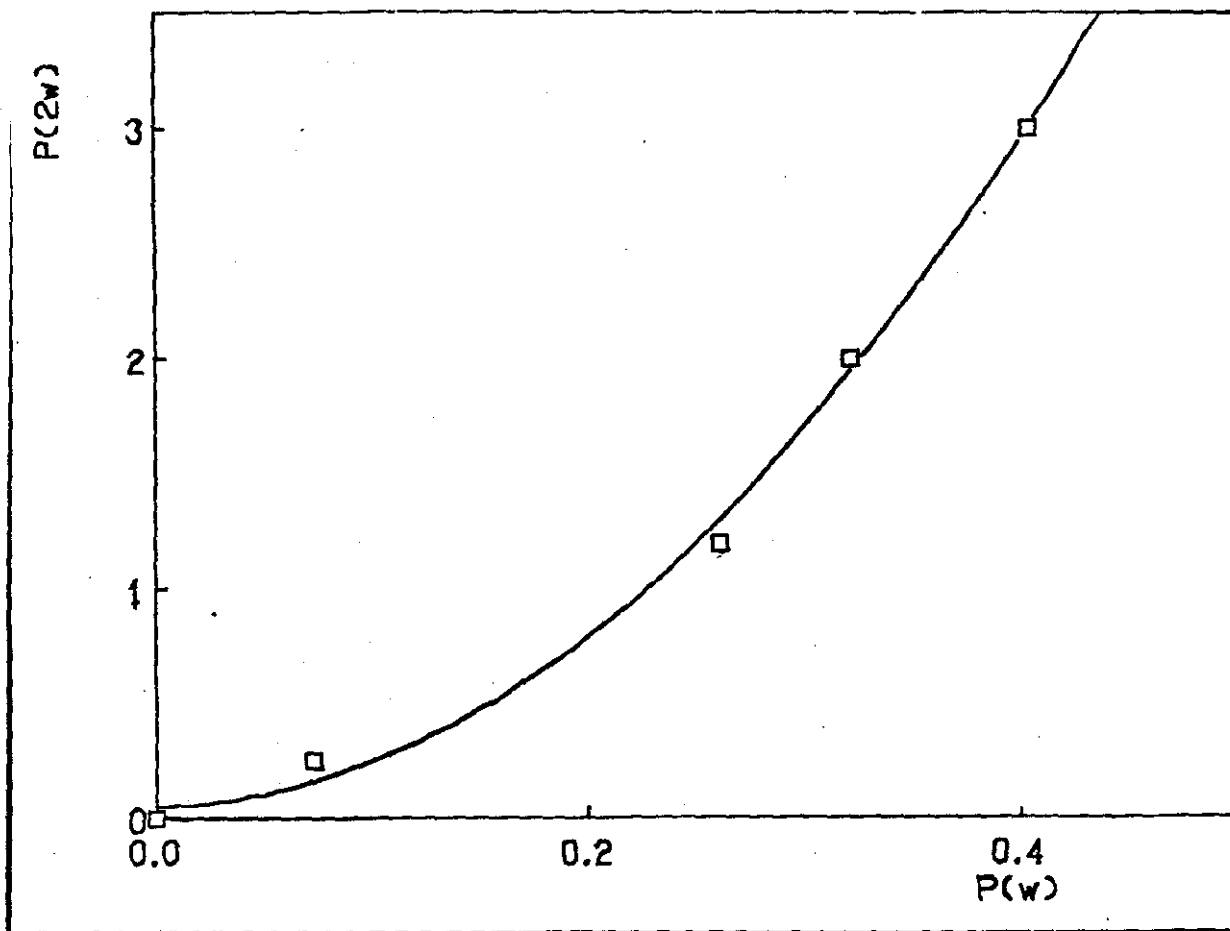


Figura 5.3
Potencia del armónico como función de la potencia de entrada

En el experimento realizado medimos la divergencia angular (en la dirección y) del haz de segundo armónico producido. Para esto, se mide el diámetro del haz para diferentes distancias medidas desde el cristal. La pendiente de la recta que mejor se ajusta a los valores experimentales es

$$\delta\theta_2 = 1.2 \text{ mrad} \quad (5.22)$$

Usando (2.35), encontramos que el valor teórico predicho para $\delta\theta$ es:

$$\delta\theta = 1.5 \text{ mrad} \quad (5.23)$$

lo que concuerda muy bien con nuestro resultado.

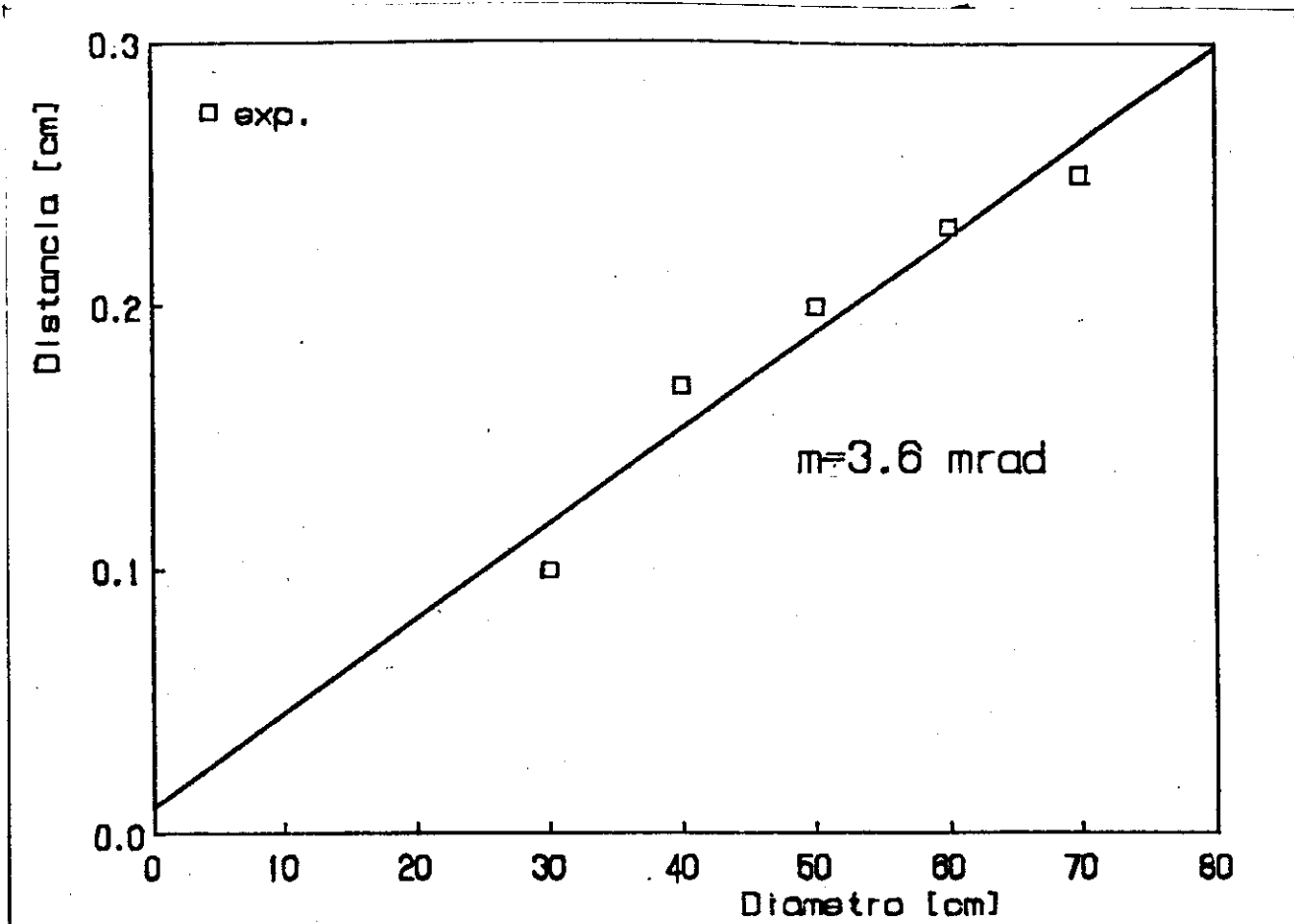


Figura 5.5
Medición de la divergencia angular

5.5 Sintonía en frecuencia del segundo armónico.

Puesto que para cada frecuencia del láser existe un ángulo óptimo de acoplamiento, cada vez que se sintoniza el láser se debe "sintonizar" el cristal para obtener el segundo armónico. Por tanto, debemos caracterizar la dependencia del ángulo de acoplamiento de fases con la longitud de onda, sobre todo si deseamos usar nuestro sistema como una fuente UV sintonizable.

El procedimiento empleado para ello, consiste en ajustar la longitud de onda del láser al valor deseado mediante el tornillo micrométrico del espejo sintonizador. La longitud de onda se lee en el monocromador. Después se ajusta la orientación del cristal con el goniómetro, de manera que la intensidad de segundo armónico sea máxima. Hay que aclarar que aunque la tolerancia angular del cristal es muy pequeña ($\delta\theta \approx 5'$ de grado), como tenemos un haz enfocado, el segundo armónico se observa en un rango de ángulos más amplio ($\approx 30'$).

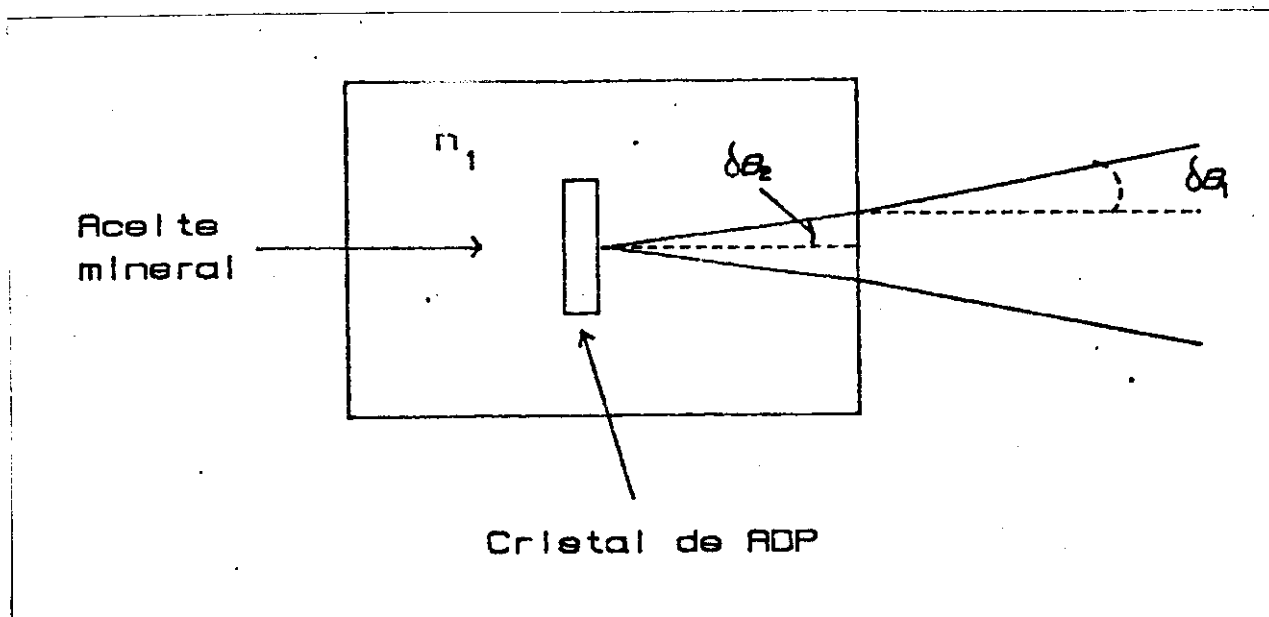
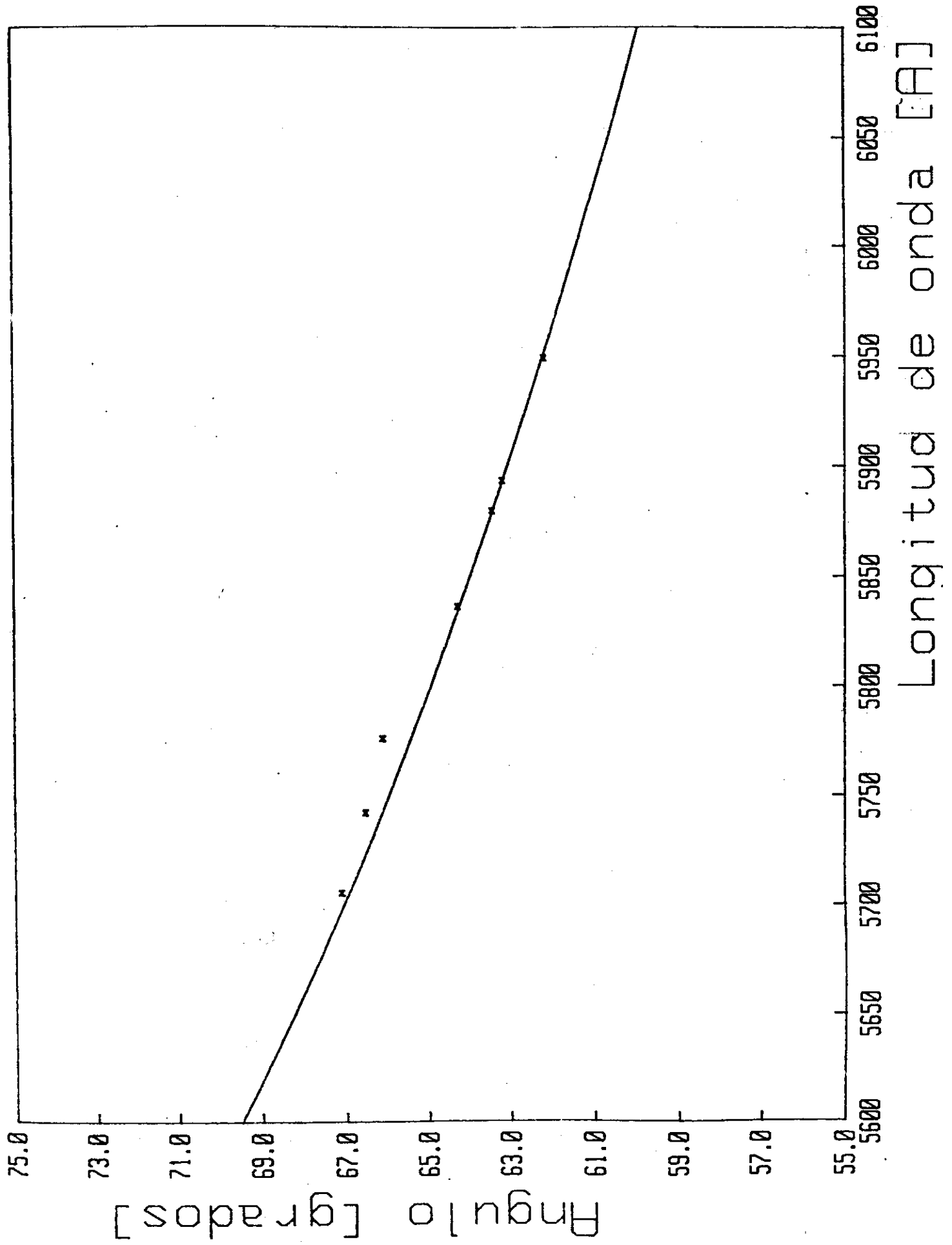


Figura 5.6
Efecto del cambio de índice de refracción en la divergencia angular

El rango de sintonía obtenido experimentalmente con la Rodamina 6G va de los 298.0 nm a los 285.0 nm. Dicho rango puede en principio ampliarse hasta los 265 nm, con el uso de otros pigmentos. En la figura 5.7 se muestran los resultados obtenidos para el ángulo de acoplamiento contra la longitud de onda fundamental.

Para comparar con la teoría usamos la expresión para θ_m dada por (2.29), la cual depende solo de los datos de índices de refracción del cristal, obtenidos de la referencia 7 del capítulo 4. En la figura se



muestran los resultados experimentales y la predicción teórica. Como se ve, existe una muy buena coincidencia entre los valores experimentales obtenidos y los cálculos teóricos

Referencias del capítulo 5.

1. - Verdeyen J.T., "*Laser Electronics*", Ed. Prentice-Hall, 1981.
2. - Francois G.E., *Phys. Rev.* 143, 597 (1966)
3. - Jerphagnon J. y S. K. Kurtz, *Phys. Rev.* B1, 1739 (1970).
4. - Yariv A., "*Quantum Electronics*", Ed. J. Wiley, 1975.

Capítulo 6

Conclusiones y perspectivas.

Hemos generado el segundo armónico de un láser visible sintonizable, que da como resultado una fuente de radiación láser UV sintonizable con una eficiencia aceptable [1]. Utilizamos un láser de pigmento con *Rodamina 6G* [2], bombeado por un láser de nitrógeno molecular. El medio no lineal lo constituye un cristal de ADP [3]. Esta es la primera vez que se realiza este proceso con láseres diseñados y construidos en México y con los primeros cristales de calidad óptica y tamaño adecuado cultivados en México. Esto es importante debido a que existen equipos comerciales con características semejantes al nuestro, que debido a que son de importación y a que incorporan tecnología avanzada, tienen un costo elevado. Para ejemplificar, mencionemos que un cristal doblador provisto de un montaje adecuado para la sintonía por ángulo de la compañía Spectra Physics, tiene un costo aproximado de 10,000 dólares. En comparación, nuestro cristal con su mecanismo sintonizador, tiene un costo total menor a los 500 dólares.

Hemos también caracterizado el proceso de generación de segundo armónico, mostrando resultados que coinciden muy bien con las predicciones teóricas de potencia, ángulo de aceptación y sintonía aplicables. Nuestros resultados coinciden también con otras observaciones reportadas previamente [4].

Sin embargo, la consecución de las condiciones actuales del experimento no estuvo exenta de problemas. Los primeros cristales utilizados eran de una pobre calidad óptica, la presencia de estrias y centros dispersores dentro del cristal, hacían difícil producir cantidades observables de segundo armónico. Debido también a que el problema es estrictamente tridimensional, resultaba difícil establecer correctamente

las condiciones de corte del cristal y la polarización del láser adecuadas. En los primeros resultados [1], la eficiencia lograda era de solo el 0.04 %, debido esencialmente a un error en el corte respecto a la polarización del haz incidente.

Actualmente, aún subsisten algunas limitaciones, por un lado el circuito de disparo del láser de nitrógeno produce ruido electrónico, lo que imposibilita el uso de equipo de detección muy sensible. Por otro, la orilla de absorción del líquido de inmersión, situada cerca de los 280 nm, establece un límite al rango de longitudes de onda en que se puede obtener el armónico.

Una acción necesaria para poder usar el sistema como fuente de excitación para espectroscopia, es la automatización de la sintonía del segundo armónico. Esta automatización comprende el control simultáneo de la longitud de onda del láser de pigmento y del ángulo de acoplamiento del cristal. Los resultados positivos en la calibración del cristal mostrados en la figura 5.7, constituyen un buen comienzo. En particular, se contempla su utilización para el estudio espectroscópico de halogenuros alcalinos dopados, que hasta la fecha solo se lleva a cabo con la frecuencia fija de 337.1 nm de los láseres de nitrógeno.

Otro campo de importancia creciente en que se puede trabajar es la generación de pulsos ultracortos. Resulta en principio sencillo producir pulsos con duración de decenas de picosegundos mediante la técnica conocida como *retroalimentación distribuida* ("distributed feedback") en láseres de pigmento [5]. Los fotodetectores y la electrónica asociada son demasiado lentos para medir el ancho temporal de estos pulsos. El segundo armónico, mediante una técnica de autocorrelación de pulsos, constituye la herramienta adecuada para medir tiempos de duración hasta la escala de los

femtosegundos [6].

Existen también aspectos fundamentales de los procesos no lineales susceptibles de ser investigados tanto experimental como teóricamente, en particular los relacionados con la comprensión de los efectos de la estadística de la luz en dichos procesos [7]. Nuestro sistema resulta interesante en este sentido, debido a que las características de la cavidad resonante del láser de pigmento, permiten variar en forma continua su ancho de banda. Así, es posible hacer un estudio detallado de la influencia del ancho de banda en los diferentes aspectos de la generación de segundo armónico.

Referencias del capítulo 6.

- 1.- Fernandez M., R. Rangel y M. Yamada, *Generacion de segundo armonico en ADP, sintonizable en el rango de 285 a 300 nm*, artículo enviado para su publicación en la *Rev. Mex. Fis.*
- 2.- Fernandez M. y R. Rangel, *Diseño y construccion de laseres de pigmento*, artículo enviado para su publicación en la *Rev. Mex. Fis.*
- 3.- Yamada, M. et al, "*Cristales electro-ópticos de ADP: tecnica de evaporación para su crecimiento*", Memoria del duodécimo Congreso de la Academia Nacional de Ingenieria, Septiembre 1986.
- 4.- Kuhl J. y H. Spitschan, *Opt. Commun.* 5, 382 (1972).
- 5.- Shank C.V., J.E. Bjorkholm y H. Kögelnik, *Appl. Phys. Lett.* 18, 395 (1971).
- 6.- Seddiki O., *Realisation et caracterisation d'une source laser femtoseconde*, Tesis Doctoral, Universidad Pierre et Marie Curie, Paris, 1986.
- 7.- Lugiato L.A. et al, *Opt. Lett.* 8, 256 (1983).

Apéndice A.

Definición de la susceptibilidad no lineal.

La expresión fenomenológica (2.9) para la polarización eléctrica en función del campo eléctrico requiere de una definición más cuidadosa, la cual contenga la dependencia explícita de la susceptibilidad no lineal con la frecuencia.

Escribamos al campo eléctrico y a la polarización como una expansión de Fourier en el dominio de las frecuencias:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad (\text{A.1a})$$

con $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, -\omega)$ (A.1b)

y $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) e^{-i\omega t} d\omega$ (A.2a)

$\mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{P}^*(\mathbf{r}, -\omega)$ (A.2b)

El caso especial de una onda monocromática con frecuencia ω_1 está dado por:

$$\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} [\mathcal{E}_1(\mathbf{r}) e^{-i\omega_1 t} + \mathcal{E}_1^*(\mathbf{r}) e^{+i\omega_1 t}] \quad (\text{A.3})$$

con componentes de Fourier:

$$\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2} \mathcal{E}_1(\mathbf{r}) \delta(\omega - \omega_1) + \frac{1}{2} \mathcal{E}_1^*(\mathbf{r}) \delta(\omega + \omega_1) \quad (\text{A.4})$$

de manera similar, una polarización monocromática con frecuencia ω_σ estará dada por:

$$\mathbf{P}_\sigma(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} [\mathcal{P}(\mathbf{r}) e^{-i\omega_\sigma t} + \mathcal{P}^*(\mathbf{r}) e^{+i\omega_\sigma t}] \quad (\text{A.5})$$

$$\mathbf{P}_\sigma(\mathbf{r}, \omega) = \frac{1}{2} \mathcal{P}(\mathbf{r}) \delta(\omega - \omega_\sigma) + \frac{1}{2} \mathcal{P}^*(\mathbf{r}) \delta(\omega + \omega_\sigma) \quad (\text{A.6})$$

El tensor de susceptibilidad no lineal $\chi^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega', \omega'')$ puede entonces definirse mediante la relación [1]:

$$P_i^{(2)}(\mathbf{r}, \omega_\sigma) =$$

$$= \epsilon_0 \sum_{jk} \int_{-\infty}^{\infty} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega', \omega'') E_j(\mathbf{r}, \omega') E_k(\mathbf{r}, \omega'') \delta(\omega_\sigma - \omega' - \omega'') d\omega' d\omega'' \quad (\text{A.7})$$

con

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega', \omega'') = \chi_{ijk}^{(2)*}(\omega_\sigma, -\omega', -\omega'') \quad (\text{A.8})$$

Integrando la ecuación (A.7) sobre $d\omega''$ se llega a una expresión de uso mas común en la literatura [2]:

$$P_i^{(2)}(\mathbf{r}, \omega_\sigma) = \epsilon_0 \sum_{jk} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega', \omega_\sigma - \omega') E_j(\mathbf{r}, \omega') E_k(\mathbf{r}, \omega_\sigma - \omega') \quad (\text{A.9})$$

los subíndices i, j, k se refieren a los ejes cristalográficos X, Y, Z. Las frecuencias ω_σ, ω' y ω'' pueden asumir valores tanto positivos como negativos, de manera que la ecuación (A.8) que define $\chi^{(2)}$ se puede aplicar a la generación de suma de frecuencias ($\omega_\sigma \geq \omega' \geq 0$), generación de diferencia de frecuencias ($\omega' < 0$ ó $\omega' > \omega_\sigma$), generación de segundo armónico ($\omega_\sigma = 2\omega'$), rectificación óptica ($\omega_\sigma = 0$) y el efecto electro-óptico ($\omega' \approx 0$).

El tensor $\chi^{(2)}$ así definido es un tensor de tercer orden que en general tiene todos sus elementos (27) diferentes. Sin embargo existe una simetría intrínseca, que consiste en lo siguiente: el producto $E_j(\mathbf{r}, \omega') E_k(\mathbf{r}, \omega'')$ es invariante ante la permutación de $j\omega'$ por $k\omega''$, por lo que $\chi^{(2)}$ debe cumplir:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega', \omega'') = \chi_{ikj}^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega'', \omega') \quad (\text{A.10})$$

Si las frecuencias ω_σ y ω' se encuentran lejos de resonancia con las transiciones del sistema en cuestión, es decir el sistema no presenta pérdidas, entonces el tensor $\chi^{(2)}$ tendrá las siguientes simetrías adicionales, conocidas como condiciones de Kleinman [3]:

$$\chi_{1jk}^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega', \omega'') = \chi_{jik}^{(2)}(\omega', -\omega_\sigma, \omega'') \quad (\text{A.11a})$$

$$= \chi_{kji}^{(2)}(\omega'', \omega', -\omega_\sigma) \quad (\text{A.11b})$$

Consideremos ahora el caso de generación de la suma de frecuencias, en que se genera una polarización con frecuencia ω_σ dada por:

$$\omega_\sigma = \omega_1 + \omega_2 \quad (\text{A.12})$$

a partir de dos campos monocromáticos con frecuencias ω_1 y ω_2 . Para esto escribamos

$$E(\mathbf{r}, \omega') = E_1(\mathbf{r}, \omega') + E_2(\mathbf{r}, \omega') \quad (\text{A.13})$$

y una relación similar para $E(\mathbf{r}, \omega'')$. Las componentes $E_1(\mathbf{r}, \omega')$ y $E_2(\mathbf{r}, \omega')$ son de la forma (A.3). Debido a que $E(\mathbf{r}, \omega')$ y $E(\mathbf{r}, \omega'')$ contienen cuatro términos cada uno, la polarización resultante dada por (A.7), contendrá 16 términos, de los cuales, debido a la simetría $jk \rightarrow kj$, solo ocho son distintos. Consideremos los términos que producen polarización a ω_σ dada por (A.12), el resultado es:

$$P_1^{(2)}(\mathbf{r}, \omega_\sigma) = \epsilon_0 \sum_{jk} \frac{1}{2} \left\{ \chi_{1jk}^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega_1, \omega_2) \mathcal{E}_{1j}(\mathbf{r}) \mathcal{E}_{2k}(\mathbf{r}) \delta(\omega_\sigma - \omega_1 - \omega_2) + \right. \\ \left. + \chi_{1jk}^{(2)}(-\omega_\sigma, -\omega_1, -\omega_2) \mathcal{E}_{1j}^*(\mathbf{r}) \mathcal{E}_{2k}^*(\mathbf{r}) \delta(\omega_\sigma + \omega_1 + \omega_2) \right\} \quad (\text{A.14})$$

Comparando esta expresión con (A.6) vemos que $\frac{1}{2} \mathcal{P}(\mathbf{r})$ es el coeficiente de $\delta(\omega_\sigma - \omega_1 - \omega_2)$, es decir,

$$\mathcal{P}(\mathbf{r}) = \epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{1jk}^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega_1, \omega_2) \mathcal{E}_{1j}(\mathbf{r}) \mathcal{E}_{2k}(\mathbf{r}) \quad (\text{A.15})$$

que en notación tensorial se escribe como:

$$\mathcal{P}(\mathbf{r}) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega_1, \omega_2) : \mathcal{E}_1(\mathbf{r}) \mathcal{E}_2(\mathbf{r}) \quad (\text{A.16})$$

Con esto, la polarización dependiente de la posición y del tiempo (A.5), en el dominio temporal será:

$$P^{(2)}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_\sigma, \omega_1, \omega_2) : \mathcal{E}_1(\mathbf{r}) \mathcal{E}_2(\mathbf{r}) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + \text{c.c.} \quad (\text{A.17})$$

Referencias del apendice A.

1. - Hanna D.C., M.A. Yuratich y D. Cotter, "*Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules*", Springer Series in Optical Sciences Vol. 17, Ed. Springer Verlag, 1979.
2. - Boyd G.D. y D. Kleinman, *J. Appl. Phys.* 39, 3597(1968).
3. - Kleinman D., *Phys. Rev.* 126, 1977 (1962).

Apendice B.

Coeficiente no lineal efectivo.

Definamos el coeficiente no lineal efectivo para generación de segundo armónico d_{ef} como:

$$d_{ef} = \frac{1}{2} \mathbf{e}_2 \cdot \chi^{(2)}(-2\omega_1, \omega_1, \omega_1) : \mathbf{e}_1 \mathbf{e}_1 \quad (\text{B.1})$$

donde \mathbf{e}_1 y \mathbf{e}_2 son vectores unitarios que denotan la dirección de polarización de los campos eléctricos a las frecuencias ω_1 y $2\omega_1$ respectivamente. El producto tensorial en (B.1) se escribe en términos de las componentes $\chi_{ijk}^{(2)}$ de la siguiente manera:

$$d_{ef} = \sum_{ijk} e_{2i} e_{1j} e_{1k} \chi_{ijk}^{(2)}(-2\omega_1, \omega_1, \omega_1) \quad (\text{B.2})$$

donde i, j, k se refieren a los ejes cristalográficos X, Y y Z.

Debido a que $\chi_{ijk}^{(2)}$ cumple con la condición de simetría (A.10), el coeficiente no lineal en (B.2), puede escribirse en una forma más compacta con la ayuda de la siguiente notación condensada:

$$d_{ef} = \sum_m e_{2i} (\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_1)_m \chi_{im}^{(2)}(-2\omega_1, \omega_1, \omega_1) \quad (\text{B.3})$$

donde se define a los tensores condensados $(\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_1)_m$ y $\chi_{im}^{(2)}$, de la siguiente manera:

$$(\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_1)_m \equiv (e_{1j} e_{2k} + e_{1k} e_{2j}) \left(1 - \frac{1}{2} \delta_{jk}\right); \quad m=m(jk) \quad (\text{B.4})$$

$$\chi_{im}^{(2)} = \chi_{im(jk)}^{(2)} \quad (\text{B.5})$$

donde m toma los valores 1, ..., 6 los cuales son asignados de acuerdo al siguiente esquema:

$$I(jk) = 1(11), 2(22), 3(33), 4(23), 5(13), 6(12) \quad (\text{B.6})$$

Consideremos que tenemos un cristal de espesor L de caras paralelas, al cual llamaremos cristal de laboratorio, cortado de manera que la condición de acoplamiento de fases (2.26) se cumpla cuando la dirección de propagación sea aproximadamente normal a las caras del cristal. Consideremos que la dirección de propagación es la dirección z y que el

eje óptico se encuentra en el plano αz , tal como se muestra en la figura 4.7. Esta figura muestra también la relación entre las coordenadas del cristal de laboratorio x, y, z y las coordenadas cristalográficas X, Y, Z (eje óptico). El coeficiente no lineal efectivo d_{ef} depende de la orientación relativa entre el cristal de laboratorio utilizado y el cristal "natural", determinado por los ángulos θ_m y θ_r .

Sean x, y, z y X, Y, Z vectores unitarios en los sistemas coordenados correspondientes. Los vectores e_1 y e_2 se referirán a las coordenadas de laboratorio:

$$e = e_x x + e_y y + e_z z \quad (B.7)$$

Debido a que las ondas luminosas son aproximadamente transversas, podemos hacer:

$$e_{1z} \approx e_{2z} \approx 0 \quad (B.8)$$

En el arreglo experimental de interés e_1 y e_2 tendrán una sola componente diferente de cero. Basta entonces con tomar:

$$e_1 = y \quad (B.9)$$

$$y \quad e_2 = x \quad (B.10)$$

Usando las relaciones de transformación entre x, y, z y X, Y, Z , se puede escribir a d_{ef} dado por (B.3) como una función $d_{ef}(\theta_m, \theta_r)$. El resultado de esta operación depende del grupo de simetría del cristal en cuestión, ya que esto determina los elementos $\chi_{11}^{(2)}$ que son diferentes de cero.

Para cristales del tipo $\bar{4}2m$ el tensor $\chi_{11}^{(2)}$ tiene la siguiente forma

[1]:

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \chi_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{36} \end{pmatrix} \quad (B.11)$$

así, es posible demostrar que d_{ef} estará dado por [2]:

$$d_{ef} = -\chi_{36} \sin 2\theta_r \sin \theta_m \quad (B.12)$$

Referencias del Apendice B.

1. - Nye J.F., "Physical Properties of Crystals", Oxford University Press, 1960, cap. VII.

2. - Boyd G.D. y D. Kleinman, *J. Appl. Phys.* 39, 3597 (1968).

Se

$$\sin mx \cos nx = \frac{1}{2} \sin (m+n)x + \frac{1}{2} \sin (m-n)x$$

$$\sin (mx) \sin (nx) = \frac{1}{2} [\cos (m-n)x - \cos (m+n)x]$$

$$\cos mx \cos nx = \frac{1}{2} [\cos (m-n)x + \cos (m+n)x]$$

Ejemplo.

i) Hallar $\int \sin(6x) \cos(9x) dx$

ii) Hallar $\int \sin(6x) \cos(6x) dx$

Solución.

ii) Tomando $u = \sin 6x$
 $du = 6 \cos 6x dx$

Entonces

$$\int \sin(6x) \cos(6x) dx$$

$$= \int u \left(\frac{du}{6}\right) = \frac{1}{6} \int u du$$

$$= \frac{1}{6} \left(\frac{u^2}{2}\right) = \frac{1}{12} u^2 + c$$

$$\therefore \int \sin(6x) \cos(6x) dx = \frac{1}{12} \sin^2(6x) + c$$