



27
21

UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA
DE MEXICO

FACULTAD DE CIENCIAS

"INTRODUCCION A LA GENERACION DE
SEGUNDOS ARMONICOS DE LUZ".

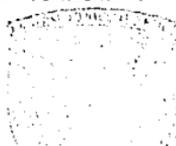
T E S I S

QUE PARA OBTENER EL TITULO DE:

F I S I C O

P R E S E N T A :

LUIS-ALEJANDRO-JULIO SANCHEZ



MEXICO, D. F.

NOVIEMBRE DE 1989.

OCT. 30 1989

TESIS CON
FALLA DE ORIGEN



UNAM – Dirección General de Bibliotecas Tesis Digitales Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS © PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis está protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

Prefacio.

En los cursos tradicionales de óptica el estudio de las interacciones de la materia con las ondas de luz se restringe a materiales dieléctricos eléctricamente neutros y a ondas de luz con campos mucho más pequeños que los campos que amarran a los electrones al átomo. Estas restricciones permiten suponer una respuesta lineal de la materia a la excitación electromagnética, a través de una relación lineal entre la polarización dipolar eléctrica del medio y el campo de radiación. Quedan, por lo tanto, excluidos todos aquellos fenómenos producidos por la interacción de la materia con campos de radiación intensos comparables a los campos atómicos; fenómenos en los cuales la relación entre la polarización y el campo es no lineal. Ejemplos de estos efectos ópticos que han sido observados son: La generación de armónicos ópticos, la producción de combinaciones de frecuencias, la rectificación óptica, el auto-enfoque, la dispersión Raman estimulada, etc. Todos ellos agrupados en la óptica no lineal.

Desde el desarrollo del laser el campo de la óptica no lineal se ha expandido tremendamente en los últimos 27 años; creciendo de un fenómeno primariamente estudiado en el laboratorio a un área de la física que abarca diversos campos de investigación, como son:

Espectroscopia atómica, molecular y de estado sólido, microscopia óptica, monitoreo remoto de contaminación, procesamiento de señal, transmisión de imágenes, transferencia de energía, y análisis de combustión.

El estudio de efectos no lineales no sólo ha proporcionado riqueza de información respecto de las interacciones de la radiación intensa con la materia, sino también de nuevas tecnologías que pueden usarse para realizar tareas que serían difíciles o imposibles con sólo la óptica lineal. Ejemplos de tales desarrollos tecnológicos se encuentran en las técnicas no lineales utilizadas para corregir las distorsiones en los frentes de ondas introducidos por aberraciones de los sistemas ópticos lineales. Otras técnicas están también bajo estudio para controlar y procesar señales ópticas en una analogía directa con las operaciones eléctricas de los transistores a menor frecuencia.

El objetivo de esta tesis es presentar una monografía acerca de la óptica no lineal que sirva como una introducción a esta importante rama de la óptica. Para alcanzar dicho objetivo la tesis ha sido dividida en siete capítulos.

El capítulo 1 consiste en un bosquejo histórico de la óptica no lineal que comprende todos aquellos fenómenos ópticos no lineales descubiertos entre 1928 y los primeros años de la década de los ochentas. Aunque efectos ópticos no lineales eran ya

conocidos desde el siglo XIX, como son: Los efectos electro-ópticos, los efectos magneto-ópticos y la fotografía misma. Estos no se incluyen en esta parte del trabajo). Para una mejor comprensión, los fenómenos ópticos son divididos, de acuerdo con sus propiedades, en 5 grupos.

En el capítulo 2 se dan los fundamentos físicos que permitirán la descripción de los distintos efectos no lineales. Siguiéndose, para esto, un enfoque clásico restringido a medios no conductores no magnéticos. También se discute brevemente los orígenes físicos de las no linealidades ópticas de los materiales enunciándose algunas de las propiedades más generales y los diferentes efectos que ellas producen. Finalizando el capítulo con la presentación de varias de las propiedades de los cristales anisotrópicos las cuales facilitarán la comprensión de temas como: susceptibilidad no lineal efectiva, relación entre susceptibilidad no lineal efectiva y coeficiente electro-óptico lineal, acoplamiento de fase, etc., que aparecerán en el resto del trabajo.

El capítulo 3 trata los procesos ópticos no lineales producidos por la susceptibilidad no lineal de segundo orden $\chi^{(2)}$, reduciendo el estudio a materiales cristalinos no centro simétricos. El capítulo se inicia con la determinación de la polarización no lineal de segundo orden utilizando un modelo clásico de oscilador anarmónico, discutiéndose posteriormente las expresiones y propiedades de simetría de la susceptibilidad no lineal $\chi^{(2)}$. A partir de estas bases se obtiene la radiación generada por la polarización no lineal. El capítulo también incluye una breve descripción del comportamiento de las ondas en la frontera de un medio no lineal.

En el capítulo 4 se estudian los factores que intervienen en la generación eficiente de procesos no lineales de segundo orden. El estudio comprende métodos para alcanzar la acoplamiento de fase en cristales no lineales, efectos producidos en las intensidades de las ondas armónicas generadas al utilizar rayos láser enfocados y las principales características de los cristales empleados en la generación eficiente de procesos no lineales.

El capítulo 5 trata algunos de los efectos no lineales producidos por la susceptibilidad no lineal de tercer orden $\chi^{(3)}$, a saber, las dispersiones Raman y Brillouin estimuladas, efecto de auto-enfoque, conjugación de fase y efecto Kerr.

En el capítulo 6 se presentan algunas aplicaciones de los procesos ópticos no lineales, tales como: corrección de distorsiones de fase, reconstrucción holográfica de imágenes, resonadores con espejos conjugados, generación no lineal de radiación, medición de frecuencias de radiación y estudio de materiales a partir de interacciones no lineales.

En el capítulo 7 se dan las conclusiones de este trabajo.

Lista de símbolos.

- Aárea donde los rayos interactúan.
 $A_j^{\omega_m}$amplitud compleja del campo eléctrico de la j -ésima.
 onda de frecuencia ω_m .
 $\|A_j^{\omega_m}\|$magnitud de $A_j^{\omega_m}$.
 A^*complejo conjugado de A .
 A_j j -ésima componente de A .
 A_1amplitud compleja del campo eléctrico de la onda
 fundamental.
 A_2amplitud compleja del campo eléctrico de la onda de
 2o. armónicos.
 A^Ramplitud compleja del campo eléctrico reflejado.
 A^Tamplitud compleja de la componente "libre" del campo
 eléctrico transmitido.
 A^Famplitud compleja de la componente "impulsada" del
 campo eléctrico transmitido.
 A_{\perp}amplitud compleja normal al plano de incidencia.
 A_{\parallel}amplitud compleja contenida en el plano de incidencia
 adiámetro del rayo.
 \vec{B}inducción magnética.
 bparámetro confocal.
 cvelocidad de la luz en el vacío.
 c_{ijkl}componente del tensor \underline{c} .
 \vec{D}desplazamiento eléctrico.
 \vec{D}_0vector de desplazamiento eléctrico del rayo ordinario.
 dsusceptibilidad dipolar eléctrica no lineal de 2o.
 orden experimental.
 d_{eff}susceptibilidad no lineal de 2o. orden efectiva.
 $\vec{E}(r, z, t)$campo eléctrico.
 $E_j(\omega_m)$ j -ésima componente del vector de campo eléctrico a
 ω_m .
 $E_m(z, t), E(\omega_m)$campo eléctrico a frecuencia ω_m .
 \vec{E}^Rcampo eléctrico reflejado.
 \vec{E}^Tcampo eléctrico de onda libre transmitida.
 \vec{E}campo eléctrico total.
 \vec{E}^Fcampo eléctrico de onda impulsada transmitida.

- \vec{E}_1campo eléctrico de la onda fundamental.
 \vec{E}_0campo eléctrico de la onda de 2ω armónicos.
 E_0^ocampo eléctrico polarizado como un rayo ordinario.
 E^ecampo eléctrico polarizado como un rayo extraordinario.
 $\langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle$promedio temporal del cuadrado del campo óptico.
 $\mathcal{E}(r, z)$amplitud real del campo eléctrico.
 \mathcal{E}'amplitud real del campo eléctrico para el rayo extraordinario.
 \mathcal{E}''amplitud real del campo eléctrico para el rayo ordinario.
 ecarga del electrón.
 \hat{e}_{\parallel} y \hat{e}_{\perp}vectores unitarios paralelo y perpendicular al eje de una molécula.
 $F(z, t)$fuerza impulsora.
 Ffuerza electro-estrictiva.
 f_npotencia del oscilador a la n -ésima transición.
 gfactor de degeneración.
 gfactor de ganancia por unidad de longitud.
 $\vec{H}(r, z, t)$campo magnético.
 \mathcal{H}amplitud del campo magnético.
 h_{ijkl}coeficiente electro-óptico no lineal.
 $\hbar = h/2\pi$constante de Planck.
 Iintensidad de una onda de luz.
 $\langle I \rangle$promedio temporal de la intensidad luminosa.
 I_{umbral}intensidad umbral.
 iíndice entero.
 iunidad imaginaria $i^2 = -1$.
 jíndice entero.
 kíndice entero.
 kconstante de Boltzmann.
 \vec{k}vector de onda.
 \vec{k}_j^pvector de onda de la polarización para la j -ésima onda.
 k_1vector de onda de onda fundamental.
 k_2vector de onda de onda de 2ω armónicos.
 \vec{k}_Rvector de onda de campo eléctrico reflejado.

- \vec{k}^T vector de onda de campo eléctrico fuente transmitido.
 \vec{k}^F vector de onda de campo eléctrico impulsada transmitida.
 \vec{k}_v vector de onda de un fonón o modo vibracional.
 L longitud del cristal.
 L_v factor de vibración.
 L_c longitud de coherencia.
 $L_s = 2/a, L_p = 2/a_p$ distancia de decaimiento.
 L_{ag} longitud de agotamiento.
 l_s longitud de apertura.
 l_{ca} longitud característica.
 l_{eff} longitud efectiva.
 M magnetización.
 m índice entero.
 m_e masa del electrón.
 N número de modos en un láser.
 N densidad de átomos.
 N_{ph} flujo fotónico a ω_j .
 \hat{N} vector unitario normal a la frontera de un medio no lineal.
 n índice entero.
 n_j índice de refracción de la j -ésima onda.
 n_{ω} índice de refracción en la dirección ω .
 n_o índice de refracción del rayo ordinario.
 n_e índice de refracción del rayo extraordinario.
 n_T índice de refracción de la onda de 2ω armónicos libre transmitida.
 n_F índice de refracción de la onda de 2ω armónicos impulsada transmitida.
 n_{ω_1}, n_1 índice de refracción de la onda fundamental.
 $n_{2\omega}, n_2$ índice de refracción de la onda de 2ω armónicos.
 $\mathcal{P}(r, z, t)$ densidad de polarización (polarización).
 $\mathcal{P}(r, z, t)$ polarización dipolar eléctrica.
 $\mathcal{P}^{(1)} = \mathcal{P}^L$ polarización lineal.
 $\mathcal{P}^{(n)}$ polarización no lineal de orden n .
 $\mathcal{P}_j(\omega_m)$ j -ésima componente del vector de polarización a frecuencia ω_m .

- $P_m(z, t) = P_m(\omega_m)$... componente de Fourier a frecuencia ω_m de la polarización dipolar total P .
- P^{NL} polarización no lineal.
- P_{\parallel} polarización no lineal paralela a \hat{x}' .
- P_{\perp} polarización no lineal paralela a \hat{x}'' .
- $P_j(r, z, t)$ amplitud del campo de polarización de la j -ésima onda.
- P_j^{NL} amplitud del campo de polarización no lineal de la j -ésima onda.
- P_{\perp} amplitud del campo de polarización normal al plano de incidencia.
- P_{\parallel} amplitud del campo de polarización paralelo al plano de incidencia.
- P^{eff} polarización armónica efectiva.
- P^o polarización armónica vista por un rayo ordinario.
- P^e polarización armónica vista por un rayo extraordinario.
- $p = (c\hbar\omega_j / v_j) = \hbar k_j$ momento de un fonón.
- p presión.
- \tilde{p} momento dipolar inducido.
- $Q(r, z, t)$ polarización cuadrupolar eléctrica.
- q coordenada.
- R reflectividad.
- r elongación del electrón respecto a su posición de equilibrio.
- r_{ijk} coeficiente electro-óptico lineal o componente del tensor electro-óptico lineal.
- r distancia algebraica medida a lo largo de la dirección de \vec{k} .
- S potencia por unidad de área de una onda luminosa (irradianza).
- \hat{s} vector unitario normal al frente de onda.
- \hat{s}_R vector unitario en la dirección de propagación armónica reflejada.
- \hat{s}_T vector unitario en la dirección de propagación armónica transmitida fuente.
- \hat{s}_F vector unitario en la dirección de propagación armónica transmitida impulsada.

- $T = \lambda / c$ periodo de oscilación.
 T temperatura.
 $T = (1/\rho) \frac{dp}{dP}$ constante elástica (módulo de volumen).
 T_1 razón de relajación de la diferencia de población.
 t tiempo.
 U energía potencial de la molécula.
 $u(x,t)$ desviación de un punto x del medio desde su posición de equilibrio.
 $u_0(r_0)$ amplitud de $u(x,t)$ o desplazamiento acústico.
 V energía potencial.
 V volumen del átomo.
 v coeficiente no lineal del término anarmónico.
 v_g velocidad del átomo.
 v_p velocidad de propagación de un modo vibracional u onda de sonido.
 w_t potencia total de la onda a la frecuencia ω .
 w_t densidad de energía eléctrica.
 w_0 radio óptico de mancha para el rayo gaussiano.
 $X(z,t)$ coordenada vibracional de una molécula.
 x,y,z coordenadas cartesianas.

Griego.

- α polarización dipolar eléctrica molecular .
 α coeficiente de absorción por unidad de longitud.
 α_1 pérdida por unidad de longitud de la onda fundamental.
 α_2 pérdida por unidad de longitud de la onda de 2o. armónicos.
 α_0 polarizabilidad eléctrica molecular constante espacial y temporalmente.
 α_p polarizabilidad eléctrica a lo largo del eje de la molécula.
 α_{\perp} polarizabilidad eléctrica perpendicular al eje de la molécula.

- α atenuación acústica.
 $(\partial\alpha/\partial x)_0$ polarizabilidad diferencial.
 β constante.
 β ángulo de ápice mitad.
 γ constante de elasticidad o fotoelástica.
 γ constante de amortiguamiento.
 Δ_{ijk} delta de Miller.
 Δk diferencia de los vectores de onda.
 Δn cambio en el índice de refracción.
 $\Delta\omega$ cambio de frecuencia.
 $\Delta\phi$ cambio de fase.
 $\Delta\theta$ cambio de variable angular θ .
 $\Delta\alpha = 2\alpha_1 - \alpha_2$
 $\Delta\gamma = \gamma/2\pi$ anchura de línea (de la dispersión Raman espontánea).
 ∇ operador gradiente.
 ∇^2 operador Laplaciano.
 ∇_{\perp}^2 operador Laplaciano transversal.
 $\nabla\mathcal{D}$ polarización octupolar eléctrica.
 δ_{jk} delta de Kronecker $\delta_{ij} = 1$ para $i=j$, $\delta_{ij} = 0$ para $i \neq j$.
 $\delta\epsilon$ cambio de la constante dieléctrica.
 δn_{\parallel} cambio en el índice de refracción de una molécula en una dirección paralela a la polarización de la luz incidente.
 δn_{\perp} cambio en el índice de refracción de una molécula en una dirección perpendicular la polarización de la luz incidente.
 $\delta n_{\parallel} - \delta n_{\perp}$ birrefringencia inducida en una molécula.
 ϵ constante dieléctrica de la materia.
 ϵ_0 constante dieléctrica del vacío.
 ϵ_{kl} elemento kl del tensor de segundo rango ϵ .
 ϵ_2 constante dieléctrica no lineal.
 ϵ_{\parallel} constante dieléctrica en la dirección x .
 η eficiencia en la conversión.
 η constante disipativa.
 θ variable angular.

- θ_mángulo de acoplamiento de índice (o de momento).
 θ_iángulo entre la normal a la frontera \hat{N} y el rayo incidente.
 θ_Fángulo entre la normal a la frontera \hat{N} y el vector \hat{S}_F .
 θ_Rángulo entre la normal a la frontera \hat{N} y el vector \hat{S}_R .
 θ_Tángulo entre la normal a la frontera \hat{N} y el vector \hat{S}_T .
 λlongitud de onda.
 λ_alongitud de onda acústica.
 μ_0permeabilidad del vacío.
 $\nu = 1/T$frecuencia de oscilación.
 ξcoordenada medida a lo largo de la bisectriz.
 π3.14159...
 βángulo de doble refracción.
 ρdensidad de masa.
 σconductividad eléctrica.
 $\phi(r, z, t)$fase.
 ϕvariable angular.
 $\chi^{(1)}, \chi^L$susceptibilidad dipolar eléctrica lineal.
 $\chi^{(n)}$susceptibilidad dipolar eléctrica no lineal de orden n .
 $\chi^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2)$susceptibilidad no lineal de segundo orden a la frecuencia $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$.
 $\chi^{(q)}(-\omega_p, \omega_1, \omega_2, \omega_3, \dots, \omega_q)$susceptibilidad no lineal de orden q a la frecuencia $\omega_p = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \dots + \omega_q$.
 $\chi_{ij}^{(1)}$elemento ij del tensor de segundo rango $\chi^{(1)}$.
 $\chi_{ijk}^{(2)}$elemento ijk del tensor de tercer rango $\chi^{(2)}$.
 $\chi_{ijkl}^{(3)}$elemento $ijkl$ del tensor de cuarto rango $\chi^{(3)}$.
 χ_{mic}susceptibilidad microscópica.
 χ_{mac}susceptibilidad macroscópica.
 $\text{Re}(\chi) = \chi'$parte real de χ .
 $\text{Im}(\chi) = \chi''$parte imaginaria de χ .
 $\omega_i = 2\pi\chi_i$frecuencia angular (o circular).
 ω_0frecuencia natural e vibración.

¹ Los tensores se representan por letras con subrayado, E; A representa a un tensor A.

- ω_s frecuencia Stokes o del sonido.
 ω_{AS} frecuencia anti-Stokes.
 ω_v frecuencia de un modo vibracional de una molécula.
 ω_l frecuencia láser.

Convención de Einstein para suma sobre índices mudos.

las expresiones corresponde a las fórmulas (1) y (4) del apéndice.

$$e'_i = a_{ij} e_j \quad \text{significa} \quad e'_i = \sum_j a_{ij} e_j$$

$$r'_{ij} = a_{ik} a_{jl} r_{kl} \quad \text{significa} \quad r'_{ij} = \sum_k \sum_l a_{ik} a_{jl} r_{kl}$$

INTRODUCCION A LA GENERACION DE SEGUNDOS ARMONICOS DE LUZ.

Prefacio.....	1
Lista de símbolos.....	3
Contenido.....	11

Contenido.

Capitulo 1: <u>OBSERVACIONES HISTORICAS.</u>	
1. Introducción.....	15
2. Optica no lineal elástica.....	15
3. Optica no lineal inelástica.....	18
4. Optica no lineal de efectos de auto-acción y de mezclado degenerado de 4 ondas.....	21
5. Optica no lineal de picosegundos.....	22
6. Optica no lineal integrada.....	23
Capitulo 2: <u>INTRODUCCION.</u>	
1. Introducción.....	26
2. No linealidades opticas-Descripción Euristicas... 27	
3. Fundamentos Físicos.....	29
4.1. Relaciones constitutivas.....	36
4.2. Factor de degeneración.....	41
5. Propiedades de las susceptibilidades no lineales 42	
5.1. Propiedades tensoriales-Simetrías espaciales.. 42	
5.1.1. Propiedades de simetría en medios isotrópicos.....	43
5.1.1.a. Procesos de orden par.....	43
5.1.1.b. Susceptibilidades de tercer orden.....	44
5.2. Simetrías de permutación.....	44
5.3. Correcciones de campos locales.....	45
6. Efectos no lineales específicos.....	45
7. Cristales anisotrópicos.....	48
7.1. Propagación de radiación electromagnética en cristales anisotrópicos.....	48
7.2. Elipsoide indicial.....	50
7.3. Propagación en cristales uniaxiales.....	51
Capitulo 3: <u>INTERACCIONES NO LINEALES DE TRES ONDAS.</u>	
1. Introducción.....	56
2. Oscilador anarmónico.....	59
3. Extensión a tres dimensiones y a tres campos mutuamente interactuantes.....	63
4. Regla de Miller y coeficiente experimental.....	64
5. Contracción de índices.....	65
6. Simetría del cristal.....	66
7. Definición de d_{eff}	68
8. Un ejemplo.....	68
9. Ecuaciones de amplitud acopladas.....	70
10. Las relaciones de Manley-Rowe.....	75

11. Generación de segundos armónicos.....	77
12. Relación entre d_{ij} y el coeficiente electro-óptico lineal r_{ij}	80
13. Ondas de luz en la frontera de un medio no lineal	82
14. Dimensiones.....	85

Capítulo 4. FACTORES QUE INTERVIENEN EN LA GENERACION EFICIENTE DE PROCESOS NO LINEALES.

1. Introducción.....	87
2. Acoplamiento de fase.....	88
2.1. Flujo de potencia en el caso de no acoplamiento de fase.....	88
2.2. Métodos de cuasi-acoplamiento de fase.....	90
2.3. Acoplamiento de fase variando la orientación del cristal.....	92
2.4. La expresión de d_{eff} para diferentes clases de cristales.....	94
2.5. Desventajas de la acoplamiento de fase por orientación	97
2.6. Acoplamiento de fase dependiente de la temperatura.....	99
2.7. Otros métodos de acoplamiento de fase.....	100
3. Dimensión finita del rayo.....	101
4. Efectos de la estructura modal en GSA.....	104
5. GSA de un láser modo cerrado (mode-locked).....	108
6. Materiales no lineales.....	108

Capítulo 5. DISPERSIONES RAMAN Y BRILLOUIN ESTIMULADAS.

1. Introducción.....	117
2. Procesos Raman y Brillouin.....	118
3. Cambios de frecuencia Stokes y anti-Stokes.....	119
4. Dispersiones óptica y acústica.....	120
5. Acoplamiento de vibraciones electromagnéticas y mecánicas.....	123
6. Tratamiento electromagnético de la dispersión Raman estimulada.....	123
6.1. Dispersión Stokes.....	123
6.2. Dispersión anti-Stokes.....	133
7. Dispersión Brillouin estimulada.....	136
7.1. Descripción Doppler de la dispersión de Brillouin.....	136
7.2. Tratamiento clásico de la dispersión de Brillouin.....	139
7.2.a. La ecuación de onda electromagnética.....	141
7.2.b. Dispersión Brillouin estimulada.....	142
7.2.c. Un ejemplo.....	145
8. Auto-enfoque de rayos ópticos.....	146
8.1. Mecanismos físicos productores de índice no lineal.....	149
8.2. Ecuaciones de auto-enfoque.....	153
9. Conjugación de fase.....	157
9.1. Mezclado degenerado de 4 ondas.....	158
9.2. Conjugación de fase por mezclado de 3 ondas.....	167
9.3. Observaciones experimentales de la conjugación de fase.....	168

10. Efecto electro-óptico cuadrático (Kerr).....	199
Capítulo 6. <u>APLICACIONES.</u>	
1. Introducción.....	171
2. Generación no lineal de campos de radiación.....	171
2.1. Aplicaciones de la conjugación de fase.....	171
2.1.1. Corrección de distorsiones de fase.....	171
2.1.2. Reconstrucción holográfica de imágenes.....	177
2.1.3. Resonadores con espejos conjugados de fase.....	178
2.2. Conversión ascendente infrarroja.....	180
2.3. Amplificación y oscilación paramétrica óptica.....	182
2.4. Mezclado Raman coherente.....	187
2.5. Medición de frecuencia de radiación.....	189
3. Estudio de materiales.....	191
3.1. Espectroscopía no lineal.....	192
3.1.1. Espectroscopía Raman coherente.....	193
3.1.1.a. Espectroscopía Raman anti-Stokes coherente (CARS).....	196
Capítulo 7. <u>CONCLUSION.</u>	199
Apéndice 1. Introducción a tensores.....	200
Apéndice 2. Tensores de susceptibilidad de segundo orden.....	204
Apéndice 3. Coeficientes no lineales.....	210
Bibliografía.....	212

Capítulo 1. OBSERVACIONES HISTÓRICAS.

Contenido.

1. Introducción.....	15
2. Óptica no lineal elástica.....	16
3. Óptica no lineal inelástica.....	18
4. Óptica no lineal de efectos de auto-acción y de mezclado degenerado de 4 ondas.....	21
5. Óptica no lineal de picosegundos.....	22
6. Óptica no lineal integrada.....	23

1. Introducción.

El estudio de los fenómenos no lineales se inicia en la década de los sesentas con el advenimiento de láseres de gran intensidad. Es hasta entonces cuando se cumple con la condición de campos electromagnéticos intensos (campos $E \geq 10^4$ V/cm) que las ondas luminosas debían satisfacer para demostrar la existencia de estos fenómenos en la región óptica. A partir de esta década el estudio de la óptica no lineal se desarrolla en varias ramas, a saber: óptica no lineal elástica, óptica no lineal inelástica, óptica no lineal de efectos de auto-acción y de mezclado degenerado de cuatro ondas, óptica no lineal de picosegundos, óptica no lineal integrada, etc.

2. Óptica no lineal elástica.

En la óptica no lineal elástica, las ondas de luz coherentes incidentes tienen una frecuencia distinta y lejana de las frecuencias características del medio. La respuesta del medio es, por lo tanto, pasiva, no absorbe ninguna energía de la luz incidente y sólo sirve como catalizador en el intercambio de fotones entre 2 o más rayos.

El primero de los procesos no lineales elásticos observado fue la generación de segundos armónicos de luz (abreviado GSA). Reportado por Franken y sus colaboradores en 1961, al detectar luz ultravioleta coherente del doble de frecuencia de un rayo láser de rubí, cuando este rayo (6940 Å) atravesó un cristal de cuarzo. Ellos explicaron la generación de la luz ultravioleta por la presencia de un término no lineal de segundo orden $\chi^{(2)}E$ en la polarización (dipolar) eléctrica del medio \mathcal{P} , expresándola por primera vez como:

$$\begin{aligned} \mathcal{P} &= \chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots \\ \mathcal{P} &= \mathcal{P}^{(1)} + \mathcal{P}^{(2)} + \mathcal{P}^{(3)} + \dots \end{aligned} \quad (1)$$

Expresión válida, en sistema CGS, para una aproximación dipolar eléctrica de la interacción radiación-materia. Donde E es la amplitud del campo eléctrico incidente; $\mathcal{P}^{(1)} = \chi^{(1)}E$ es la polarización lineal eléctrica del medio; $\mathcal{P}^{NL} = \mathcal{P}^{(2)} + \mathcal{P}^{(3)} + \dots$ es la polarización no lineal; $\mathcal{P}^{(n)}$ es la polarización no lineal de n-ésimo orden; $\chi^{(1)}$ es la susceptibilidad eléctrica del medio y $\chi^{(n)}$ (con $n = 2, 3, \dots$) es la susceptibilidad que caracteriza las propiedades no lineales (con $\chi^{(2)} = 1.1 \times 10^{-9}$ ues para cuarzo).

Tiempo después nuevos procesos no lineales elásticos producidos por la polarización no lineal

MM1 NOTA: LA REFERENCIA SE ABREVIARA EN LO SUCEVIVO POR REF.

$$P^{(2)} = \chi^{(2)} E_1 E_2 \quad (2)$$

son descubiertos. En 1962 cuando dos rayos ω_1, ω_2 son superpuestos en un medio no lineal Bass y colaboradores^(REF. 11) detectan suma de frecuencia $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ y Smith y Braslau detectan diferencia de frecuencia $\omega_4 = \omega_1 - \omega_2$ ^(REF. 75P. 2). Ambos procesos reciben el nombre de mezclado óptico (o paramétrico). Ese mismo año la polarización corriente directa (cd), llamada rectificación óptica (o efecto electro-óptico inverso por su contraposición con el efecto electro-óptico Pockels) predicho por (2) cuando $\omega_1 = \omega_2$, fue observado en un cristal de fosfato dihidrógeno de amonio (ADP) por Bass, Franken y colaboradores^(REF. 41 pp. 1229-1280).

En 1962 Giordmaine, Kleinman, Maker y otros, se dan cuenta de que para obtener una interacción eficiente (la eficiencia en la conversión de la potencia fundamental a la potencia de segundos armónicos en el experimento de Franken fue del orden de 10^{-3}); las velocidades de fase de las ondas fundamental y armónica generada deben ser iguales, nombrándose a dicha condición *acoplamiento de fase (o de momento)*.^(REF. 41, pp. 47-51) Ellos demuestran que la condición de acoplamiento de fase es posible de obtener en cristales birrefringentes, variando su orientación y produciendo con esto cambios en los índices de refracción que igualan las velocidades de fase.

En 1966 Hobden y Wagner estudian como lograr la acoplamiento mediante la variación del índice de refracción con la temperatura en un cristal de niobato de litio ($LiNbO_3$).^(REF. 41 pp. 51 y 182) Y ese mismo año Adams y Barret realizan la acoplamiento de fase utilizando un campo eléctrico para controlar el índice de refracción de un cristal de fosfato dihidrógeno de potasio (KDP).^(REF. 41, pp. 119-117) A partir entonces muchos otros medios se han utilizado para alcanzar la condición de acoplamiento como son: aplicación de presión, aplicación de campos magnéticos,⁽²⁾ alternación de placas cristalinas con susceptibilidades $\chi^{(2)}$ invertidas en signo, cambios de fase por reflexión en guías de ondas, etc.^(REF. 12) Algunas de estas técnicas se utilizan como medio de sintonía en osciladores ópticos.

En 1966 Miyazaky y colaboradores reportaron una eficiencia en la conversión máxima de segundos armónicos (abreviado SA) bajo acoplamiento de fase, del 36%, al atravesar un rayo fundamental con longitud de onda de 619.8 nm un cristal beta-borato de boro (BBO).^(REF. 2) En este resultado también influyeron la alta susceptibilidad no lineal $\chi^{(2)}$ del cristal y la potencia de la onda fundamental (potencia de 150 kW con anchura de pulso de 12 nanosegundos).

Entre 1963 y 1966 Bjorkholm, Kleinman, Boyd et al estudian otros factores importantes para el mezclado no lineal eficiente como: enfocamiento^(REF. 6, pp. 1248-1260), operación de generación de segundos armónicos con un resonador externo y dentro de la cavidad láser.

En 1963 Geusic y sus colaboradores alcanzan el 100% de eficiencia en la conversión de segundos armónicos de una longitud

de onda $1.06 \mu\text{m}$, en un cristal $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ colocado dentro de la cavidad de un láser Nd:YAG. (REF. 6, pp. 1220-1230)

Una importante extensión de las interacciones no lineales ocurre en 1965 cuando Wang y Racette observan ganancia significativa en un experimento de mezclado de tres frecuencias. La posibilidad de ganancia paramétrica óptica había sido considerada en teoría previamente por Kingston, Kroil y otros desde 1962. (REF. 41, pp. 47-51)

En 1965 Giordmaine y Miller demuestran por primera vez oscilación paramétrica óptica coherente en un cristal LiNbO_3 . Ellos lograron una ganancia adecuada para vencer las pérdidas en el cristal, alcanzando el umbral de oscilación. (REF. 41, pp. 47-51) Este último trabajo marcó el inicio de una gran actividad en el estudio de los osciladores paramétricos como fuente de luz coherentes sintonizables.

En la actualidad se ofrece ya a la venta un oscilador paramétrico óptico integrado por un láser Nd:YAG, con frecuencia doblada correspondiente a una longitud de onda de 532 nm utilizada como fuente de bombeo, y un cristal LiNbO_3 operado a altas temperaturas. El oscilador puede cubrir casi de manera completa el espectro de 5000 \AA a $4 \mu\text{m}$. (REF. 96, pp. 171)

Después de más de un cuarto de siglo de trabajos con materiales ópticos no lineales es posible combinar láseres colorantes sintonizables, láseres de estado sólido con centros de color sintonizables y láseres de inyección semiconductores sintonizables, con los procesos ópticos no lineales en cristales, para generar luz en el rango continuo de 130 nm a $18 \mu\text{m}$. (REF. 2 y 50)

En 1962 Pershan y Bloembergen (premio Nobel de Física en 1982 junto con Schawlow y Slegbahn por sus contribuciones al desarrollo de las espectroscopias láser y electrónica de alta resolución) (REF. 61) analizan la conducta de las ondas de luz en la frontera de un medio no lineal. A partir de las condiciones frontera que satisfacen los campos eléctricos y magnéticos de las ondas armónicas generadas, ellos derivan, para estas mismas ondas, relaciones equivalentes a las conocidas leyes de la reflexión y de la refracción; obteniendo fenómenos más complicados en especial cuando la birrefringencia está presente. (REF. 10)

La detección de los procesos ópticos no lineales elásticos producidos por los restantes términos no lineales de la polarización $\rho^{(2)}$, $\rho^{(3)}$, ..., etc., se inicia en 1962. En este año la generación de terceros armónicos (abreviado GTA) producida por la polarización de la forma $\rho^{(3)} = \chi^{(3)} E^3$ fue observada por Terhune y colaboradores en un cristal de calcita (CaCO_3), usando un láser de rubí. (REF. 6, pp. 1220-1230) Del experimento resalta el valor tan pequeño de la susceptibilidad de tercer orden $\chi^{(3)}$ (con

magnitud aproximada de 10^{-14} ues^{MMI}) en comparación con $\chi^{(2)}$, y la consiguiente necesidad de luz fundamental de gran intensidad para la observación del efecto, que la mayor parte de las veces produce la destrucción rápida del cristal por daño óptico.

La GTA a diferencia de la GSA puede observarse en todo medio isotrópico, incluso en aquellos medios donde $\chi^{(2)}$ se anula bajo una aproximación dipolar eléctrica de la interacción (es importante hacer notar que existen medios isotrópicos no centrosimétricos, en los cuales se generan segundos armónicos bajo una aproximación dipolar eléctrica; tal es el caso de los cristales cúbicos pertenecientes a las clases 23 y 43m; ver apéndice 2). esta característica sugirió utilizar como medios no lineales para la generación de terceros armónicos y armónicos mayores a líquidos y gases. Tales medios revelaron propiedades que los separan de los cristales no lineales en ambos sentidos, práctico y fundamental; como son: disponibilidad del medio en dimensiones espaciales ilimitadas; alta resistencia al daño óptico; recuperación a la ruptura producida por altas intensidades luminosas; transparencia sobre rangos de frecuencia amplios; y posibilidad de variar su composición, concentración, profundidad y apertura. (REF. 9 y REF. 20, pp. 9)

En 1963 Bey y colaboradores detectan por primera vez la GTA a 354.7 nm y 353 nm de un láser Nd:vidrio de 1060 nm, en hexafluoracetona líquida mezclada con colorante rojo Fucsina para lograr el igualado.

En 1969 Ward y New reportan la conversión de TA en gases nobles (He, Ne, Ar, etc.)³¹ usando un láser de rubi. Las susceptibilidades no lineales $\chi^{(3)}$ (tan bajas Centre 4×10^{-30} y 987×10^{-30} ues) de los gases dieron como resultado eficiencias en la conversión del orden de 10^{-12} . (REF. 20, pp. 20 y 20)

En 1976 Reintjes y colaboradores generan radiación coherente en el ultravioleta extremo (UV) a varias longitudes de onda extendiéndose hasta 38 nm., por generación armónica de quinto y séptimo orden, además de procesos de mezclado de frecuencias, radiando gases raros con un láser Nd:YAG. Las eficiencias fueron del orden de 10^{-5} .

En 1977 la conversión de novenos armónicos de la radiación de un láser Nd:vidrio fue observada por Grozeva y colaboradores, en una mezcla de gases Na:Ar, obteniendo eficiencia de aproximadamente 10^{-18} , y una estimación de la susceptibilidad $\chi_{a,eff}^{(9)}$ de aproximadamente 10^{-64} ues. (REF. 20, p. 150)

3. Óptica no lineal inelástica.

En la óptica no lineal inelástica la frecuencia de la luz incidente es igual o cercanamente igual a alguna de las

Nota: las siglas ues o unidades electrostáticas, según la convención, solo hacen referencia al sistema CGS utilizado; y no a las unidades precisas de la susceptibilidad; que en este caso son ues² (dinas)² (o en MKS m²/V²).

frecuencias de resonancia del medio. Por lo tanto, el medio absorbe energía de la luz incidente, lo que lleva a sus átomos y moléculas a niveles de mayor energía. La luz dispersada por el material reflejara estos cambios mediante variaciones en su frecuencia.

En los efectos radiación-materia comprendidos en esta rama de la óptica no lineal; se supone que los cambios apreciables en las poblaciones de niveles energéticos (atómicos o moleculares), inducidos por campos de radiación intensos, sólo ocurren en tiempos mucho mayores que el tiempo de defasaje incoherente de átomos y moléculas (tiempos de emisiones espontáneas, tiempos de colisiones atómicas, etc.). Luego, sigue siendo válida la aproximación (1) para su descripción.

Los procesos no lineales inelásticos se representan por una polarización de tercer orden $P^{(3)} = \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3$ y suelen dividirse en procesos donde las propiedades no lineales de absorción de la materia son lo más relevante; y procesos donde las propiedades de la radiación dispersada, tanto como las propiedades de absorción del medio, son importantes.

El estudio del primer grupo se inicia en 1931 con la predicción teórica de la absorción de dos fotones hecha por Maria Göppert Mayer (Premio Nobel de Física en 1927 junto con Jensen y Wigner).

En 1961, la absorción de 2 fotones es detectada por primera vez, cuando Garret y Robinson hacen incidir un láser de rubí a 6940 Å sobre un cristal de $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2+}$. La absorción de 2 fotones terminaba en un nivel del Eu^{2+} y se detecta vía la intensidad fluorescente a 4250 Å de un nivel ocupado más bajo, el cual es poblado debido a la relajación del estado excitado. (REF. 3, pp. 1347-1348 y REF. 93, p. 359)

Entre 1963 y 1964 Sorokin, Master, Ward, Kafalas y otros, inician el estudio de la saturación (disminución) de la absorción en materiales no lineales, al someter a dichos materiales a grandes intensidades. La fuente utilizada fue un láser de rubí, aplicado a películas colorantes y vidrios de uranio.

La saturación en la absorción fue inicialmente utilizada para fabricar filtros blanqueables a altas intensidades, que permitieron obtener pulsos gigantes de luz con una duración de cientos de nanosegundos.

Basados en la saturación de la absorción, en 1976 Gibbs, Mc Call y Ventkatesan demuestran experimentalmente el efecto de biestabilidad óptica que ocurre en una cavidad resonante Fabry-Perot conteniendo un medio no lineal saturable. El fenómeno había sido predicho previamente por Szoke et al (1969).

El efecto de biestabilidad óptica consiste en la exhibición, por parte de la cavidad, de dos regiones estables de transmisión para una intensidad de entrada, una de baja intensidad transmitida y otra de alta intensidad transmitida. Si la intensidad incidente no tiene la suficiente energía para sostener la absorción, la mayor parte de la radiación se refleja dentro de la cavidad; permaneciendo la intensidad transmitida en la región

estable baja. Pero cuando la intensidad incidente se aumenta, la absorción intracavidad se satura, lo que permite a la intensidad transmitida salir de la cavidad y pasar a la región estable alta; similar a lo que ocurre en un circuito electrónico activo. (REF. 66, pp. 442-450 y REF. 71)

La detección del segundo grupo de procesos inelásticos empieza en 1929. En ese año Raman reporta un material que simultáneamente absorbe un fotón y emite otro (fotón dispersado). Las energías de los 2 fotones discrepaban por una cantidad correspondiente a la diferencia de energía entre 2 niveles cuánticos vibracionales de las moléculas del material. Este efecto previsto en 1923 por Smekal fue nombrado *dispersión Raman espontánea*. (REF. 65)

En el mismo año Cabannes reconoce que la dispersión Raman espontánea puede ser también producida por la rotación de las moléculas del medio. Frecuentemente este efecto es mal llamado *dispersión Rayleigh*.

En 1922 Brillouin y Mandel'stham predicen la dispersión de la luz por ondas acústicas excitadas térmicamente, en la cual los fotones dispersados presentan un cambio Doppler de su frecuencia debido a las condiciones de Bragg creadas por la onda de sonido (y no a movimientos térmicos de los átomos del material). El efecto es conocido como *dispersión Brillouin espontánea*. (REF. 65)

En 1930 Gross detecta la dispersión Brillouin espontánea en líquidos colorantes, observando luz dispersada compuesta por 3 frecuencias. La estructura triplete de la luz y el cambio de frecuencia Doppler son explicados en 1934 por Landau y Placzek, utilizando teoría termodinámica. (REF. 65)

Una característica general une a estos procesos, a saber, que en todos ellos la luz, ya sea incidente o dispersada, es siempre incoherente.

Aunque predicha años antes por Javan (inventor del láser He-Ne), la *dispersión Raman estimulada* fue observada experimentalmente en 1962 por Woodbury y Ng. (REF. 37) Ellos encontraron al introducir un rayo láser pulsado de 10^6 Watts en una celda Kerr de nitrobenzono, que aproximadamente 10% de la luz incidente a 6940 Å emerge como luz coherente a una nueva frecuencia, correspondiente a una longitud de onda de 7760 Å. Posteriormente Woodbury en colaboración con Eckardt y su grupo determinó que el cambio de frecuencia, de aproximadamente 40 THz, era característico de uno de los modos de vibración de las moléculas del benceno. (REF. 48, p. 456-457)

En 1964 Chiao, Townes y Stoicheff descubren la *dispersión Brillouin estimulada* cuando hacen pasar un rayo láser intenso de frecuencia ω_2 a través de un cristal (safiro o cuarzo), encontrando que ondas acústicas coherentes a frecuencia ω_s son producidas dentro del cristal, mientras que simultáneamente un rayo óptico a frecuencia $\omega_2 - \omega_s$ se genera. (REF. 64, p. 480)

4. Optica no lineal de efectos de auto-acción y de mezclado degenerado de 4 ondas.

Pertencientes a los procesos ópticos elásticos, los procesos de auto-acción y de mezclado degenerado de 4 ondas tienen la característica común de poseer polarizaciones no lineales de la misma frecuencia que las de los rayos incidentes, con la diferencia de que en los efectos de auto-acción la polarización no lineal creada por un rayo incidente afecta la propagación u otra propiedad de la misma onda; mientras que en el mezclado degenerado de 4 ondas la polarización no lineal creada por un rayo o rayos incidentes afecta a otro rayo de la misma frecuencia; pero que es distinguible por su dirección de propagación o su polarización. (REF. 53) (REF. de CAPÍTULO 5)

El primero de los efectos de auto-acción tratado fue el auto-enfoque de un rayo pulsado de radiación. En 1962 Askar'yan predice este efecto. (REF. 54) El observa que si un medio no lineal es atravesado por un rayo muy intenso con un perfil de intensidades gaussiano, el índice de refracción n del medio sufrirá incrementos proporcionales a la intensidad del rayo, es decir, $n = n_1 + n_2 \parallel E \parallel^2$ (con n_1 y $n_2 > 0$ constantes). Al variar la intensidad como una función monótona decreciente de la distancia al eje del rayo, los cambios de índice $n_2 \parallel E \parallel^2$ producidos se traducirán en un enfoque del haz.

En 1965 Pilepetskiy, Rustamov, Bloembergen y Lallemand observan experimentalmente este efecto. (REF. 54)

Por otro lado, Litvak predice que si el índice no lineal del medio n_2 es negativo, el auto-desenfoque ocurre. (REF. 54)

En 1965 Gordon y colaboradores estudian experimentalmente el auto-desenfoque o termofloreado en líquidos usando un láser de He-Ne. (REF. 5 CAPÍTULO 5)

Entre 1966 y 1988 Bloembergen, Lallemand, Shimoda, Shimiza, Chueng, Bolshov, Venkin y otros, estudian los cambios temporales de la envolvente de los pulsos luminosos producidos por el índice no lineal n_2 del medio y por la variación temporal de la intensidad láser. Notando que dicho efecto, conocido como auto-modulación de fase, se manifiesta principalmente en un ensanchamiento espectral anómalo del pulso. (REF. 5 CAPÍTULO 5)

En 1967 Gerritsen discute el mezclado degenerado de 4 ondas (abreviado MD40) en un medio absorbente para su uso en holografía de tiempo real. (REF. 56 pp. 839-860)

Siguiendo una propuesta hecha por Yariv en 1976 para lograr la conjugación de fase mediante el mezclado de 3 ondas en un cristal isotrópico, en 1977 Hellwarth propone utilizar el MD40 con ondas de bombeo contrapropagantes para generar ondas conjugadas de fase en un medio transparente, y aprovecharlas para la corrección de aberraciones de fase. (REF. 56, pp. 859-860).

Pensando en una onda de luz como una imagen grabada que se

mueve al correr un rollo de película. El conjugado de fase de la onda es la imagen que resultaría al correr el rollo en reversa. es, por lo tanto, una inversión temporal de la onda, que se mueve en dirección contraria y con la fase inicial invertida (de ahí el nombre de *conjugado de fase*, si se piensa en una representación exponencial de los campos). (REF. 30)

La conjugación de fase fue primero observada en 1972 por Zel'dovich y colaboradores, utilizando dispersión Brillouin estimulada generada en un recipiente conteniendo metano gaseoso. En la actualidad es una de las áreas de investigación más activas en óptica no lineal, por la gran cantidad de aplicaciones que presenta en: procesamiento de imágenes, computación óptica, corrección de dispersión en fibras ópticas, sistemas de amplificación de energía láser, etc. (REF. 31 Y 32)

5. Óptica no lineal de picosegundos.

En la óptica no lineal de picosegundos se estudian principalmente las interacciones ópticas no lineales transitorias mediante el uso de pulsos de picosegundos. Las constantes de tiempo para estas interacciones caen en el rango de 10^{-13} a 10^{-10} s.

Cada proceso óptico no lineal elástico e inelástico tiene su correspondiente interacción transitoria, así se han observado dispersión Raman estimulada transitoria, auto-enfoque transitorio, etc. Referencias históricas de estos fenómenos pueden encontrarse en el libro editado por E.L. Shapiro. (REF. 74)

De las interacciones ópticas transitorias destacan los fenómenos resonantes coherentes no lineales. Estos fenómenos sólo ocurren cuando la duración de los pulsos de radiación es mucho más corta que el tiempo de defasaje del sistema atómico o molecular involucrado. En ellos el campo de radiación pulsado interactúa coherentemente con el conjunto de átomos y moléculas del sistema, poseyendo una frecuencia casi igual a la resonancia del material. En este caso los procesos requieren de un tratamiento distinto a la aproximación dipolar eléctrica para su descripción. (REF. 74 CAPITULO 4 Y REF. 6 CAPITULO 5)

Con la obtención de luz coherente a partir del láser surge la posibilidad de lograr transitorios ópticos coherentes análogos a los ya conocidos procesos transitorios de spin.

En 1984 el concepto *eco de spin* es extendido a la región óptica por Abella *et al* al irradiar un cristal de rubí con dos pulsos cortos de luz coherente, y observar la salida de un tercer pulso igualmente espaciado, al cual llamaron *eco de fotón*. (REF. 22)

En 1988 Hocker *et al* al observan el análogo óptico del transitorio de rotación de spin, usando un láser CO_2 en una transición infrarroja (IR) del SF_6 . Ellos detectaron la repetición de un ciclo de absorción estimulada de luz realizada por el

material, al irradiarlo con un pulso lo suficientemente largo e intenso. (REF. 22)

En 1969 MacCall y Hahn predicen en un medio resonante, la existencia de un pulso unico, que se propaga sin deformación y sin pérdida de energía (lo que es sólo posible, según la teoría clásica, para ondas monocromáticas), el pulso es conocido como solitón. En 1970 es verificada experimentalmente la existencia del solitón óptico por Gibbs y Slusher. (REF. 57)

A partir de entonces se ha predicho, y en algunos casos detectado, más de 10 fenómenos no lineales de este tipo, como son:

superradiancia, pasaje rápido adiabático, rompimiento de pulsos, etc. (REF. 2 CAPÍTULO ES Y REF. 74, CAP. 4.)

6. Óptica no lineal integrada.

En la óptica no lineal integrada se estudian los fenómenos no lineales que ocurren en películas delgadas, con el objeto de fabricar y combinar instrumentos ópticos miniatura que permitan la propagación y el control de información óptica.

La investigación en el campo de la óptica no lineal integrada es iniciada en 1968 por varias instituciones, entre las cuales se encuentran:

Los laboratorios Bell, la IBM, El Instituto Tecnológico de California y La Compañía Thomson-CSF de Francia. (REF. 65)

A partir de esta fecha se demuestra la generación eficiente de procesos no lineales elásticos e inelásticos en películas delgadas, producidos principalmente por:

la alta densidad de potencia de las ondas guiadas, la propagación sin difracción y la fácil obtención de la acoplamiento de fase en las películas.

Por ejemplo, en 1983 Hewig y Jain reportaron una eficiencia en la conversión máxima de SA en el rango de longitudes de onda de $0.84 \mu\text{m}$ a $0.92 \mu\text{m}$, bajo acoplamiento de fase del modo TM_0 al TM_2 , del 30%; al irradiar con un rayo de $1.08 \mu\text{m}$ una película orgánica policristalina de paracloprofenturea. (REF. 61)

Además de los fenómenos no lineales ya conocidos, en las películas delgadas se descubren interacciones de tercer orden relacionadas con la dependencia de la intensidad del índice de refracción ($n = n_1 + n_2 \parallel E \parallel^2$) que sólo ocurre en óptica no lineal integrada.

Entre 1982 y 1985 Akmediev, Stegeman, Seaton, Chilwell, Boardman, Egan, Leung, Benneon, Goodwin y otros predicen la existencia de una nueva clase de ondas guiadas, cuyas propiedades cambian dramáticamente con la potencia de la onda incidente (afectando su posición dentro de la película); y cuya aparición sólo ocurre arriba de determinadas potencias umbrales incidentes. (REF. 61)

Durante el periodo comprendido entre 1980 y 1984 Valera, Carter, Seaton, Stegeman, Chen, Liao, Winful et al pronostican y demuestran que la eficiencia en el acoplamiento entre la potencia óptica producida por una fuente y la potencia que penetra y recorre la fibra, via acopladores distribuidos tales como rejillas y prismas, es una función de la potencia de entrada. Si el índice de la película o del sustrato dependen de la intensidad. Este efecto fue llamado *acoplamiento coherente dependiente de la potencia*. (REF. 61)

En 1980 Jansen propone el uso de un índice dependiente de la intensidad para alterar las condiciones de acoplamiento de fase entre dos guías de ondas de canal paralelas, permitiendo así, la transferencia de energía de una guía a la otra. Este fenómeno, conocido como *acoplamiento coherente no lineal*, fue demostrado experimentalmente por Haus y colaboradores en 1983, utilizando una guía de canal en LiNbO_3 y otra en GaAs GaAlAs. (REF. 61)

Por último, baste decir la gran importancia que representará en el futuro la óptica no lineal integrada en campos tales como el procesamiento y la transferencia de información.

Capítulo 2. INTRODUCCION.

Contenido

1. Introducción.....	25
2. No linealidades ópticas ¹ -Descripción Eurística...	27
3. Fundamentos Físicos.....	29
4.1. Relaciones constitutivas.....	36
4.2. Factor de degeneración.....	41
5. Propiedades de las susceptibilidades no lineales.....	42
5.1. Propiedades tensoriales-Simetrías espaciales..	42
5.1.1. Propiedades de simetría en medios isotrópicos.....	43
5.1.1.a. Procesos de orden par.....	43
5.1.1.b. Susceptibilidades de tercer orden.....	44
5.2. Simetrías de permutación.....	44
5.3. Correcciones de campos locales.....	45
6. Efectos no lineales específicos.....	45
7. Cristales anisotrópicos.....	48
7.1. Propagación de radiación electromagnética en cristales anisotrópicos.....	48
7.2. Elipsoide indicial.....	50
7.3. Propagación en cristales uniaxiales.....	51

1. Introducción.

Cuando una onda de luz se propaga a través de un medio óptico, los campos electromagnéticos oscilantes ejercen una fuerza polarizante sobre todos los electrones contenidos en el medio. Puesto que los electrones interiores de los átomos están fuertemente amarrados al núcleo, la mayor parte del efecto polarizante se ejerce sobre los electrones exteriores o de valencia. Con fuentes de luz ordinarias los campos de radiación son mucho más pequeños que los campos que amarran a los electrones al átomo (de aquí que la radiación actúe como una pequeña perturbación). Este tipo de campos produce una polarización dipolar eléctrica \vec{P} que es proporcional al campo eléctrico \vec{E} de la onda de luz incidente.

$$\vec{P} = \chi^{(1)} \vec{E}$$

En donde la susceptibilidad lineal eléctrica $\chi^{(1)}$ es una medida de la respuesta al campo.

De cualquier manera si el campo de radiación es comparable con los campos atómicos (de 10^{10} V/cm. entonces la relación entre la polarización y el campo de radiación deja de ser lineal (ver figura 2.3), expresándose la polarización como una serie de potencias del campo eléctrico incidente.

Los grandes campos de luz requeridos para la exhibición de esta no linealidad son proporcionados por fuentes láser.

En medios isotrópicos al poseer \vec{P} y \vec{E} la misma dirección la expansión involucra solo las magnitudes de ambos vectores, expresándose:

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

Donde los coeficientes en los diferentes términos son llamados susceptibilidades dipolares eléctricas de n-ésimo orden.

En el caso de medios cristalinos, al no ser \vec{P} y \vec{E} obligatoriamente paralelos, la polarización \vec{P} tiene que expresarse como una expansión del tipo:

$$\vec{P}(t) = \chi^{(1)} \cdot \vec{E}(t) + \chi^{(2)} : \vec{E}(t) \vec{E}(t) + \chi^{(3)} ; \vec{E}(t) \vec{E}(t) \vec{E}(t) + \dots$$

Donde la susceptibilidad eléctrica del medio $\chi^{(n)}$ de orden n, es un tensor de rango n+1 con 3^{n+1} componentes; con : representando un doble producto escalar; y ; representando un triple producto escalar.

En ambas expresiones de \vec{P} , $\chi^{(1)}$ denota a la susceptibilidad lineal eléctrica, la cual es generalmente mucho mayor que las susceptibilidades no lineales $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$, ..., etc. Por ejemplo:

$\chi^{(1)} \approx 1$ en cristales

$\chi^{(2)} \approx 10^{-9}$ ues en cristales

$\chi^{(3)} \approx 10^{-10}$ ues en cristales

$\chi^{(3)} \approx 10^{-15}$ ues en líquidos isotrópicos

Algunos de estos valores pueden verificarse en apéndice B.
Los valores tan pequeños de las susceptibilidades no lineales explican el porque los términos no lineales solo contribuyen notablemente a la polarización cuando los campos eléctricos incidentes tienen gran amplitud. Son precisamente los efectos producidos por estos términos no lineales los que estudia la óptica no lineal.

Para hacer una distinción entre los términos lineales y no lineales que componen a la polarización \vec{P} , se suele escribir:

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL}$$

don $\vec{P}^L = \chi^{(1)} \vec{E}(t)$

y $\vec{P}^{NL} = \chi^{(2)} \vec{E}(t) \vec{E}(t) + \chi^{(3)} \vec{E}(t) \vec{E}(t) \vec{E}(t) + \dots$

Una vez que ha sido determinada la relación entre la polarización no lineal y los campos eléctricos incidentes para un efecto no lineal particular, el siguiente paso en la descripción del fenómeno consiste en determinar el campo radiado por la polarización no lineal \vec{P}^{NL} . Utilizando para esto la ecuación de onda con fuente del campo eléctrico radiado (ecuación derivada a partir de las ecuaciones de Maxwell y de las relaciones constitutivas del material), i.e.,

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2}$$

En este capítulo se aceptarán los fundamentos matemáticos de la respuesta no lineal de los materiales que nos capacitarán para describir los diferentes procesos no lineales. También se discutirá brevemente los orígenes físicos de las no linealidades ópticas de los sistemas materiales, enunciándose algunas de sus propiedades más generales y los diferentes efectos específicos que ellas producen.

2. No linealidades ópticas-Descripción Eúristica.

Las respuestas ópticas de los materiales se determina por la respuesta de electrones y iones a la luz incidente. La interacción entre radiación materia puede describirse conceptualmente como sigue:

La luz que incide sobre un medio induce en la distribución de electrones y iones un momento dipolar oscilante por unidad de

volumen. El momento dipolar inducido por unidad de volumen o polarización, a su vez radia un segundo campo óptico que puede interferir con el campo incidente. En muchos materiales la conducta de los electrones o iones puede describirse como si ellos estuvieran amarrados respecto de sus posiciones de equilibrio en un pozo de potencial que es armónico para pequeños desplazamientos. En todos los materiales reales, de cualquier manera, el pozo de potencial llega a ser anarmónico para desplazamientos lo suficientemente grandes desde su equilibrio, como se ilustra en la figura (1).

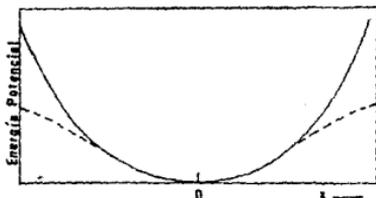


FIGURA 1. REPRESENTACION ESQUEMATICA DE UN POZO DE POTENCIAL QUE PUEDE SER RESPONSABLE DE NO LINEALIDADES OPTICAS. LA LINEA SOLIDA REPRESENTA UN POZO ARMONICO ($V = a x^2$), QUE PERMITE EFECTOS OPTICOS LINEALES. LA LINEA PUNTEADA MUESTRA UN POZO ANARMONICO ($V = a x^2 - b x^3$) QUE PUEDE RESULTAR EN NO LINEALIDADES OPTICAS DE TERCER ORDEN.

Este es el modelo clásico que se sigue para estimar los coeficientes no lineales de segundo y de tercer orden.

Cuando los campos incidentes son débiles los electrones se mueven en una parte armónica del pozo. Bajo estas condiciones la polarización inducida depende de las mismas frecuencias que aquellas contenidas en las ondas incidentes. La interferencia entre las ondas incidentes y secundarias resulta en las propiedades ópticas familiares de dispersión, refracción y absorción lineal.

Cuando los campos incidentes son suficientemente fuertes los desplazamientos de los electrones serán mayores, llevándolos dentro de la región anarmónica del pozo de potencial. La polarización desarrollada en este régimen contiene componentes que dependen de las potencias de segundo y mayor orden de los campos incidentes. Los campos secundarios radiados por la polarización inducida pueden contener ahora frecuencias que son

diferentes de aquellas contenidas en los campos incidentes y producirá los efectos no lineales discutidos aquí.

En la sección siguiente se asentarán los conceptos básicos de los cuales se parte para la descripción de las no linealidades ópticas.

3. Fundamentos Físicos.

El estudio se restringirá a medios no conductores, no magnéticos y eléctricamente neutros, esto implicará una conductividad eléctrica $\sigma = 0$, una magnetización del material $M=0$ y una densidad de carga $\rho=0$. La propagación de una onda óptica a través de estos medios es descrita por las ecuaciones de Maxwell.

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad (1.a)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (1.b)$$

$$\nabla \cdot \vec{D} = 0 \quad (1.c)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (1.d)$$

Donde \vec{E} , \vec{D} y \vec{H} son los vectores eléctrico, desplazamiento eléctrico e intensidad magnética, asociados con una onda de luz. La respuesta del medio puede expresarse definiendo los vectores de polarización eléctrica \vec{P} (con posibles términos dipolares, cuadrupolares, etc.) y magnética M , que en nuestro caso es cero:

$$\vec{D} = \vec{E} + 4\pi\vec{P} \quad (2.a)$$

$$\vec{B} = \vec{H} + 4\pi\vec{M} \quad (2.b)$$

La mayoría de las interacciones que han sido estudiadas son el resultado de polarizaciones eléctricas (existen contribuciones magnéticas pero son de magnitud mucho menor).

Las dos últimas ecuaciones del material también pueden expresarse como:

$$\vec{D} = \underline{\epsilon} \vec{E}$$

$$\vec{B} = \underline{\mu} \vec{H}$$

Donde $\underline{\epsilon}$ es conocida como la constante dieléctrica (o permitividad), y $\underline{\mu}$ es llamada permeabilidad magnética (con $\mu \approx 1$ para los medios considerados aquí). El subrayado en $\underline{\epsilon}$ y $\underline{\mu}$ indica su carácter tensorial.

Aunque las ecuaciones de Maxwell son aparentemente ecuaciones diferenciales simples de primer orden, su acoplamiento dificulta su uso en la solución de problemas. Por lo tanto, es necesario reducirlas a dos ecuaciones de onda desacopladas, una para \vec{E} y otra para \vec{H} , utilizando para esto las relaciones constitutivas (2).

Para derivar la ecuación de onda correspondiente al campo eléctrico \vec{E} primero tomemos el rotacional de la Ec.(1.a)

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} (\nabla \times \vec{H})$$

Sustituyendo la ecuación (2.a) en la expresión anterior obtenemos la ecuación de onda

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \vec{p}$$

Considerando la identidad vectorial

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = \nabla (\nabla \cdot \vec{E}) - \nabla^2 \vec{E}$$

la ecuación de onda se reescribe como:

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial \vec{p}}{\partial t} + \nabla (\nabla \cdot \vec{E})$$

Por otro lado, suponiendo que el medio es homogéneo (tal que $\nabla \epsilon = 0$) y expandiendo la ecuación (1.c)

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \vec{D} &= \nabla \cdot (\epsilon \vec{E}) = 0 \\ &= \epsilon \nabla \cdot \vec{E} + \vec{E} \cdot \nabla \epsilon = 0 \end{aligned}$$

Lo que implica:

$$\nabla \cdot \vec{E} = 0$$

Aplicando este resultado se obtendrá la expresión de la ecuación de onda para el campo eléctrico de las ondas de luz en términos de las polarizaciones eléctricas.

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial \vec{p}}{\partial t} \quad (3.a)$$

Partiendo de la ecuación (1.b) es posible derivar una ecuación de onda similar para el campo magnético \vec{H} .

$$\nabla^2 H - \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 H}{\partial t^2} = 0 \quad (3.b)$$

Debido a las características de los medios estudiados en este trabajo, sólo se utilizará la ecuación (3.a) para la descripción de los distintos efectos no lineales, al hacer esto se deberá tener siempre en mente la composición dual eléctrica \vec{E} y magnética \vec{H} de una onda de luz.

Para representar a los campos electromagnéticos incidentes, partiremos de una onda monocromática de frecuencia ω propagándose en la dirección z , descrita por el campo eléctrico

$$E(\omega) = A(\omega) e^{-i(\omega t - kz)} + c.c.$$

Donde $c.c.$ denota el complejo conjugado de $A(\omega) e^{-i(\omega t - kz)}$ (igual a $A^* e^{+i(\omega t - kz)}$), $A(\omega)$ es la amplitud del campo eléctrico real $E(\omega)$, y k es la magnitud del vector de onda de la radiación, relacionado con la longitud de onda λ por $k = 2\pi/\lambda$.

La onda monocromática $E(\omega)$ considerada es una idealización que nunca se realiza en la práctica. No obstante, se sigue del Teorema de Fourier que cualquier onda real $E(r, z, t)$ (con r la coordenada espacial transversal) puede considerarse como una superposición de ondas monocromáticas de diferente frecuencia:

$$\begin{aligned} E(r, z, t) &= \int_0^{\infty} E(\omega) d\omega \\ &= \int_0^{\infty} A(\omega) e^{-i(\omega t - kz)} d\omega + c.c. \end{aligned}$$

Por otro lado, se dice que una onda es "cuasi-monocromática", si las amplitudes de Fourier $A(\omega)$ difieren apreciablemente de cero sólo dentro de un rango angosto de frecuencias.

$$\bar{\omega} - \frac{1}{2} \Delta\omega \leq \omega \leq \bar{\omega} + \frac{1}{2} \Delta\omega \quad (\Delta\omega/\bar{\omega} \ll 1)$$

alrededor de una frecuencia media $\bar{\omega}$. En tal caso usualmente se habla de un "grupo o paquete" de ondas.

Considerando un grupo de ondas unidimensional propagándose en la dirección z

$$E(r, z, t) = \int_{\Delta\omega} A(\omega) e^{-i(\omega t - kz)} d\omega + c.c.$$

Donde $\Delta\omega$ denota un pequeño intervalo alrededor de la frecuencia media $\bar{\omega}$ ($\Delta\omega/\bar{\omega} \ll 1$) para el cual $A(\omega)$ difiere apreciablemente de cero, con $k = n(\omega)\omega c^{-1}$ el correspondiente número de onda. Entonces el grupo de ondas puede expresarse en la forma:

$$E(r, z, t) = \left[A(r, z, t) e^{-i(\omega t - kz)} + c.c. \right] \quad (4.a)$$

Donde

$$A(r, z, t) = \int_{\Delta\omega} A(\omega) e^{-i(\omega t - kz)} d\omega$$

Si $\Delta\omega$ es suficientemente pequeño, E puede interpretarse como una onda plana con amplitud variable, de frecuencia ω y número de onda k , propagándose en la dirección z . La envolvente $A(r, z, t)$ se representa como una superposición de ondas armónicas de frecuencia $\omega - \omega_0$. Si $\Delta\omega/\omega_0$ es muy pequeño comparado con la unidad entonces $A(r, z, t)$ variará muy lentamente en comparación con el término $e^{-i(\omega t - kz)}$, en este caso se dice que $A(r, z, t)$ satisface "la aproximación de envolvente variando lentamente". La amplitud A en la Ec.(4.a) es en general compleja, contribuyendo con un término a la fase $\omega t - kz$, i.e.,

$$A(r, z, t) = \frac{A(r, z)}{\omega} e^{i(\omega_0 t - kz)} \quad (4.b)$$

La mayoría de los campos de radiación producidos por fuentes láser pueden considerarse como grupos o paquetes de onda que satisfacen la aproximación de la envolvente variando lentamente. Por lo tanto, dichos campos pueden representarse mediante la expresión (4.a) (con lo sucesivo se suprimirá la barra en ω y k para evitar confusiones).

La aproximación de envolvente variando lentamente con el tiempo es generalmente bien satisfecha por la radiación láser disponible a la fecha. Por ejemplo, la estructura de amplitud más rápida que ha sido producida en pulsos láser visibles tiene un tiempo característico del orden de 5×10^{-14} s (esta es exactamente la duración del pulso más corto que ha sido producido); mientras el periodo de oscilación de la luz a longitud de onda visible ($\lambda = 500$ nm) es $T = \lambda/c = 2.8 \times 10^{-10}$ s; aproximadamente 200 veces más corto.

En problemas que involucran procesos no lineales ópticos se anticipa la presencia de radiación en más de un paquete de ondas, ya sea porque está presente en la radiación incidente o porque se genera en el curso de la interacción no lineal. Campos ópticos cuyas componentes no están cercanamente espaciados en longitud de onda puede expresarse simplemente como la suma de términos similares a la expresión en la Ec.(4.a), con el campo total dado por:

$$E_T = \left[\sum_l A_l(r, z, t) e^{-i(\omega_l t - k_l z)} + c.c. \right] \quad (5)$$

Burdamente hablando, esta representación es válida cuando el espectro de frecuencias de varios campos componentes no se traslapa. Una expresión similar puede escribirse para la polarización que es inducida por los campos:

$$P = \left[\sum_j P_j(r, z, t) e^{-i(\omega_j - k_j)z} + c.c. \right] \quad (6)$$

El vector de onda de la polarización en la Ec.(6) ha sido específicamente designado como perteneciente a la polarización para enfatizar que puede en general diferir del vector de onda de un campo óptico a la misma frecuencia. Esta diferencia en los vectores de onda, la cual proviene de una diferencia en las velocidades de fase entre la polarización y el campo que la impulsa, puede afectar la dirección del flujo de energía entre las distintas ondas.

A continuación se procede a simplificar las ecuaciones de onda para un grupo de campos electromagnéticos E_1, E_2, \dots, E_j incidentes o generados en un medio no lineal, a fin de obtener un conjunto de ecuaciones sencillas de manejar para las amplitudes A_1, A_2, \dots, A_j de dichos campos, en términos de las amplitudes de las polarizaciones. Para realizar esta tarea nos basaremos en un conjunto de suposiciones precisas, se advierte que tales suposiciones presentan limitaciones y no pueden ser aplicadas a todos los procesos no lineales (Ej: auto-atrapamiento de rayos).

La primera suposición implica la separación de la polarización en una suma de una parte lineal y una no lineal:

$$P = P^L + P^{NL} \quad (7)$$

La segunda suposición considera que la polarización lineal será proporcional al campo eléctrico:

$$P^L = \epsilon^L E \quad (8)$$

Estas dos suposiciones son válidas para un amplio rango de interacciones en sólidos, líquidos y gases; aunque existen situaciones donde una o ambas no se cumplen.

Si se sustituyen las Ecs.(5)-(8) en la Ec. (3), se puede obtener un conjunto de ecuaciones acopladas en términos de polarizaciones no lineales:

$$\nabla_{\perp 1}^2 A_1 + 2ik_1 \frac{\partial A_1}{\partial z_1} + \frac{2in_1^2 \omega_1}{c^2} \frac{\partial A_1}{\partial t} = - \frac{4\pi\omega_1^2}{c^2} P_1^{NL} e^{-i\Delta k_1 z}$$

$$\nabla_{\perp}^2 A_j + 2ik_j \frac{\partial A_j}{\partial z} + \frac{2in_j^2 \omega_j}{c^2} \frac{\partial A_j}{\partial t} = - \frac{4\pi\omega_j^2}{c^2} p_j^{NL} e^{-i\Delta k_j z} \quad (9)$$

Donde $\Delta k_j = k_j - k_j^p$ es el vector de onda diferencia para la j -ésima onda y $\nabla_{\perp}^2 \equiv \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$ es el Laplaciano transversal.

Para derivar las Ecs.(9) se utilizaron las aproximaciones:

$$\frac{\partial^2 A_j}{\partial z^2} \approx k_j \frac{\partial A_j}{\partial z}, \quad \frac{\partial^2 A_j}{\partial t^2} \approx \omega_j \frac{\partial A_j}{\partial t}$$

Que son un resultado directo de la aproximación de la envolvente variando lentamente. También se ha utilizado la relación:

$$k_j^2 = \frac{\omega_j^2}{c^2} (1 + 4\pi\chi_j^{(1)}) = \frac{\omega_j^2}{c^2} n_j^2 \quad (10)$$

Donde n_j es el índice de refracción lineal usual a la frecuencia de la j -ésima onda.

Los índices j cubren todas las frecuencias, incluyendo aquellas que están en la radiación incidente y aquellas que son generadas en el medio durante el transcurso de la interacción no lineal. La Ec.(9) así representa un conjunto infinito de ecuaciones que describen todos los posibles campos que pueden provenir de combinaciones arbitrarias de las frecuencias del láser incidente. En la mayoría de las situaciones, de cualquier forma, sólo un conjunto finito de ecuaciones en el sistema (9) es necesario considerar.

Una situación común, por ejemplo, es cuando los campos incidentes son suficientemente débiles tal que sus amplitudes no cambian significativamente durante las interacciones. En muchas situaciones de este tipo las diferentes componentes de la polarización no lineal dependerán sólo de las amplitudes de los campos incidentes y no de las amplitudes de los campos generados. Como resultado las ecuaciones para las amplitudes de los campos incidentes en (9) podrían ignorarse, mientras las ecuaciones para las diferentes amplitudes de campo generadas se desacoplan. Los procesos no lineales se realizarán entonces con baja eficiencia en la conversión. Entendiéndose la eficiencia en la conversión como una medida de la efectividad con la cual la potencia de las ondas incidentes o de bombeo se transfiere a la onda generada (para una definición más precisa consultese la sección II del capítulo 3 ecuación (42)).

Una segunda situación comúnmente encontrada es aquella en la cual un proceso no lineal particular, tal como la generación de terceros armónicos, domina la interacción. En este caso la amplitud de la onda generada podría crecer hasta compararse con el de la onda incidente, mientras la onda incidente pueda agotarse. En tal situación sólo las ecuaciones de (9) que se aplican a las dos ondas dominantes serán retenidas. El proceso no

lineal se efectuará entonces con una alta eficiencia en la conversión.

Las ecuaciones (9) se derivaron suponiendo que la susceptibilidades lineales no sufren dispersión. Aunque la mayoría de los materiales tiene algún grado de dispersión, las Ecs.(9) seguirán siendo válidas si las amplitudes de campo son independientes del tiempo. En caso contrario, cuando las amplitudes de las ondas dependen del tiempo y tienen, por lo tanto, una anchura de frecuencia finita, la dispersión de la susceptibilidad lineal se describirá introduciendo una velocidad de grupo v_g para cada amplitud de campo.

$$v_g = \frac{c/n_i}{1 + (\omega_i/n_i) \frac{d n_i}{d \omega_i}} \quad (11)$$

Con v_g sustituyendo a las velocidades de fase ω/k en la Ec.(9).

De cualquier forma, en la mayoría de las situaciones se supone normalmente que las velocidades de grupo de las distintas ondas son iguales. Bajo esta suposición se puede transformar a un sistema coordenado que se propaga a una velocidad de grupo común:

$$z' = z, \quad t' = t - z/v_g$$

Luego, la derivada temporal explícita en el lado izquierdo en la Ec.(9) puede eliminarse dando:

$$\begin{aligned} \nabla_{\perp}^2 A_i(r, z', t') + 2ik_i \frac{\partial}{\partial z} A_i(r, z', t') &= - \frac{4\pi\omega_i^2}{c^2} P_i^{NL} e^{-i\Delta k_i z'} \\ \vdots \\ \nabla_{\perp}^2 A_j(r, z', t') + 2ik_j \frac{\partial}{\partial z} A_j(r, z', t') &= - \frac{4\pi\omega_j^2}{c^2} P_j^{NL} e^{-i\Delta k_j z'} \end{aligned} \quad (12)$$

Estas ecuaciones tienen la forma de las ecuaciones que describen interacciones con campos estacionarios $A(r, z, t) = A_j(r, z)$

Tomando todos los campos incidentes y generados en la forma de ondas planas viajeras en la dirección $+z$, tal que $A_j(r, z) = A_j(z)$, las ecuaciones anteriores se reducen a:

$$2ik_i \frac{d}{dz} A_i(z) = - \frac{4\pi\omega_i^2}{c^2} P_i^{NL} e^{-i\Delta k_i z}$$

⋮

$$2ik_j \frac{d}{dz} A(z) = - \frac{4\pi\omega_j^2}{c^2} P_j^{NL} e^{-i\Delta k_j z} \quad (13)$$

En las cuales se ha suprimido el primado en z.

4.1. Relaciones constitutivas.

Para completar la descripción de las interacciones no lineales deben darse relaciones constitutivas que especifiquen la dependencia de la polarización de los campos ópticos.

Es posible expresar la polarización \mathcal{P} como una expansión multipolar en términos de las distribuciones de carga en el medio tal que:

$$\mathcal{P}(r, z, t) = \mathcal{P}(r, z, t) + \nabla \mathcal{Q}(r, z, t) + \nabla \cdot \nabla \mathcal{D} + \dots \quad (15)$$

El primer término en la Ec.(15) corresponde a la polarización dipolar eléctrica, el segundo a la polarización cuadrupolar eléctrica, el siguiente a la polarización octupolar, etc. Se ha encontrado que la polarización dipolar usualmente domina la respuesta del medio no lineal (con algunas excepciones que no se tratarán aquí, pero que pueden consultarse en Arecchi p.1248) lo que permite despreciar los otros términos.

Limitados a una aproximación dipolar eléctrica de la interacción radiación-materia y a la necesidad de grandes campos electromagnéticos incidentes requeridos para la generación de fenómenos no lineales, analicemos la conducta de varios materiales no lineales sujetos a un rayo de luz intenso monocromático, para obtener la relación entre la polarización dipolar y los campos ópticos:

Al incidir un campo eléctrico muy intenso E (del orden de 10^7 V/cm para que sea menor a los campos eléctricos locales cohesivos del cristal; comprendidos entre 10^8 V/cm y 10^{10} V/cm) alternante a una frecuencia ω sobre un cristal no lineal no centrosimétrico (por ejemplo: cuarzo, KH_2PO_4 , $NH_4H_2PO_4$, GaAs, etc.); los electrones de valencia débilmente amarrados se redistribuirán al paso del campo, induciendo esta redistribución una polarización dentro del cristal. La polarización inducida para cada valor del campo se grafica en la figura (2.a).

De la figura(2.a) se nota que la respuesta de la polarización \mathcal{P} con respecto al campo es no lineal. Un análisis de Fourier de la onda de polarización no lineal en la Fig.(2.b) muestra que contiene segundos armónicos de ω , tanto como un término promedio (cd). Esta conducta no lineal es producida por la estructura unidireccional del material. La carencia de un centro de simetría produce que un campo en la dirección derecha sea más efectivo para polarizar el medio, que un campo en la dirección izquierda (ver gráfica 2.a). (REF. 22)

Siendo el campo eléctrico E y la polarización proporcionales a:

$$E(t) \propto [e^{-i(\omega t)} + \text{c.c.}]$$

$$P(t) \propto [\text{constante}] + [e^{-i(\omega t)} + \text{c.c.}] + [e^{-i(2\omega t)} + \text{c.c.}]$$

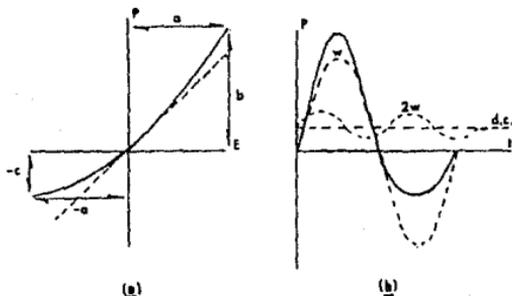


FIGURA 2.a. RELACION ENTRE LA POLARIZACION INDUCIDA Y EL CAMPO ELECTRICO EN UN CRISTAL QUE CARECE DE SIMETRIA DE INVERSION .

FIGURA 2.b. EL ANALISIS DE LA POLARIZACION NO LINEAL INDUCIDA (CURVA CONTINUA) MUESTRA QUE ESTA CONTIENE COMPONENTES OSCILANTES DE LA MISMA FRECUENCIA (ω) QUE EL CAMPO INCIDENTE, DEL DOBLE DE LA FRECUENCIA (2ω) Y DE UNA FRECUENCIA CERO O dc.

Existirá una relación entre la polarización y el campo óptico de la forma:

$$P(t) = \chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t)$$

Si ahora el campo óptico de luz incide sobre un material isotrópico centrosimétrico, por ejemplo un líquido, la polarización dipolar eléctrica inducida presenta de nuevo una conducta no lineal como función del campo eléctrico incidente (ver figura 3.a). Mediante un análisis de Fourier se encuentra

que la polarización está compuesta principalmente de una onda pura a la frecuencia fundamental, y de una onda de terceros armónicos débil (figura 3.b).

La no linealidad de la polarización en el medio isotrópico se debe a que el desplazamiento de las cargas no puede seguir en proporción exacta al campo eléctrico cuando este se eleva a su intensidad pico.

La existencia de una componente de terceros armónicos en la polarización requiere la presencia de un término cúbico (E^3) en la relación entre la polarización y el campo óptico.

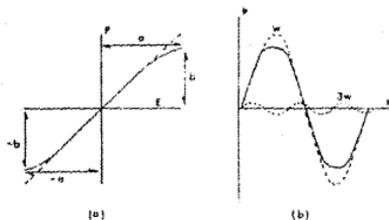


FIGURA 3.5. RELACION ENTRE LA POLARIZACION INDUCIDA Y EL CAMPO EN UN MEDIO ISOTROPICO.

FIGURA 3.5. ANALISIS DE LA POLARIZACION NO LINEAL INDUCIDA (CURVA CONTINUA, DONDE SE MUESTRA QUE LA POLARIZACION CONTIENE DOS COMPONENTES. UNA ONDA DE LA MISMA FRECUENCIA QUE LA DEL CAMPO INCIDENTE, Y UNA ONDA DE BAJA AMPLITUD DE TERCEROS ARMONICOS.

Del análisis anterior podemos concluir que la polarización dipolar dependiente del tiempo puede ser escrita en términos de los campos ópticos, para una interacción no lineal cualquiera, como:

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

$$P(t) = P^{(1)} + P^{NL} = P^{(1)}(t) + P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots \quad (16)$$

Los coeficientes de los diferentes términos son conocidos como susceptibilidades dipolares eléctricas de n-ésimo orden.

$P^{(n)}(t) = \chi^{(n)} E^n(t)$ para $n > 1$ es la polarización no lineal dipolar eléctrica de orden n.

Para la validez de la expansión (16) son necesarias dos condiciones:

- 1) Una respuesta temporal de las componentes de la polarización mucho más rápida que la escala de tiempo sobre la cual las amplitudes de los campos varían.
- 2) Campos ópticos débiles comparados con los campos que amarran a los electrones, para justificar la convergencia de la serie (16).

Una demostración formal de la expansión (16) se encuentra en Reintjes pp. 11-13.

Las ecuaciones (13) y (16) forman la base en la mayor parte de las discusiones de los efectos no lineales tratados aquí. Existen, sin embargo, algunas situaciones en las cuales pueden no ser válidas estas ecuaciones, por ejemplo:

- 1) Cuando una de las frecuencias incidentes, o combinación de frecuencia suma o diferencia, o múltiplo de frecuencia, es igual a esta lo suficientemente cerca de una resonancia del medio (como puede suceder en absorción de 2 fotones, dispersión Raman, etc.).
- 2) Cuando la duración de la radiación incidente es lo suficientemente corta (pulsos luminosos de picosegundos; y en algunos casos aun de nanosegundos), tal que la polarización puede no responder lo suficientemente rápido para seguir a los campos aplicados (como en los fenómenos resonantes coherentes no lineales).

Para clarificar el papel que juegan las susceptibilidades consideremos los dos primeros términos de la expansión (16). En el primero de ellos $\chi^{(1)} E(t)$, la susceptibilidad lineal tiene solo un argumento de frecuencia y describe las polarizaciones lineales a la misma frecuencia.

Ahora escribamos el segundo término de la expansión (16) como:

$$P^{(2)} = \chi^{(2)} E^2 \quad (17)$$

Donde $P^{(2)}$ será la polarización no lineal debida a esta primera no linealidad únicamente; conocida como polarización no lineal de segundo orden.

Supongamos que se desea analizar la interacción de dos ondas viajeras planas propagándose en la dirección + z, con dos frecuencias distintas ω_1 y ω_2 , tal que:

$$E_1(z, t) = E_1 \cos(-\omega_1 t + k_1 z)$$

$$E_2(z, t) = \delta_2 \cos(-\omega_2 t + k_2 z)$$

Al sustituir la superposición $E_1 + E_2$ de estas ondas por E en la Ec.(17) se obtiene:

$$p^{(2)} = \chi^{(2)} \left[\delta_1^2 \cos^2(-\omega_1 t + k_1 z) + \delta_2^2 \cos^2(-\omega_2 t + k_2 z) + 2 \delta_1 \delta_2 \cos(-\omega_1 t + k_1 z) \cos(-\omega_2 t + k_2 z) \right]$$

Usando relaciones trigonométricas elementales $\cos^2 \alpha = (1 + \cos 2\alpha)/2$ y $\cos \alpha \cos \beta = \frac{1}{2} [\cos(\alpha + \beta) + \cos(\alpha - \beta)]$, se encuentra que la polarización consiste de un número de componentes con diferentes frecuencias; que son:

$$p^{(2)}(2\omega_1) = \frac{\chi^{(2)}}{2} \delta_1^2 \cos \left[2(-\omega_1 t + k_1 z) \right]$$

$$p^{(2)}(2\omega_2) = \frac{\chi^{(2)}}{2} \delta_2^2 \cos \left[2(-\omega_2 t + k_2 z) \right]$$

$$p^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \frac{\chi^{(2)}}{2} \delta_1 \delta_2 \cos \left[-(\omega_1 + \omega_2)t + (k_1 + k_2)z \right]$$

$$p^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \frac{\chi^{(2)}}{2} \delta_1 \delta_2 \cos \left[-(\omega_1 - \omega_2)t + (k_1 - k_2)z \right]$$

... (18. a)

Y un término constante.

$$p^{(2)}(\omega = 0) = \chi^{(2)} (\delta_1^2 + \delta_2^2) \quad (18. b)$$

Vemos que además de las polarizaciones esperadas de ω_1 y $2\omega_1$ y $2\omega_2$, existen otras dos componentes a una frecuencia suma y a una frecuencia diferencia. Luego, una polarización a frecuencia $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ (o $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$) puede generarse a través de un término de segundo orden por los campos a las frecuencias ω_1 y ω_2 . La susceptibilidad no lineal para este proceso se especifica como $\chi^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2)$.

La convención usual para los argumentos de las frecuencias de las susceptibilidades no lineales es escribir la frecuencia de la polarización resultante primero con signo menos. Las frecuencias de todos los campos que se combinan para formar la polarización resultante se escriben enseguida, de tal manera que la suma de

las frecuencias en el argumento de cero.

Concluyendo, una susceptibilidad de orden n $\chi^{(n)}$, conecta una polarización de frecuencia ω con un número n de campos; que pueden tener diferentes frecuencias.

El ejemplo utilizado muestra todos los procesos no lineales de segundo orden asociados con $\chi^{(2)}$. Más adelante se enunciarán los procesos no lineales de tercer orden asociados con $\chi^{(3)}$.

4.2. Factor de degeneración.

Aunque la ecuación (16) expresa a la polarización total $\mathcal{P}(t)$ en términos de potencias del campo eléctrico total $E(t)$, es normal expresar los distintos términos $\mathcal{P}_1(t)$ ($= \mathcal{P}(\omega_1)$), $\mathcal{P}_2(t)$ ($= \mathcal{P}(\omega_2)$), $\mathcal{P}_3(t)$ ($= \mathcal{P}(\omega_3)$)...., etc., de $\mathcal{P}(t)$, como los productos o potencias de las componentes individuales $E_1(t)$ ($= E(\omega_1)$), $E_2(t)$ ($= E(\omega_2)$)...., etc., contenidos en la Ec. (5). Cuando esto se hace es necesario tomar en cuenta el número de frecuencias distintas que están presentes.

Si se considera, por ejemplo, el proceso de segundos orden de generación de segundos armónicos, entonces la componente apropiada de la polarización no lineal puede escribirse como:

$$\mathcal{P}^{(2)}(t) = \chi^{(2)} E_1^2 \quad (19)$$

Por otro lado, al tratar el proceso de frecuencia suma $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$; debido a la combinación de los campos incidentes a ω_1 y ω_2 ; como un campo total:

$$E_T(t) = E_1(t) + E_2(t) \quad (20.a)$$

La componente de la polarización a la frecuencia suma ω_3 esta dada por:

$$\mathcal{P}^{(2)}(t) = 2 \chi^{(2)} E_1(t) E_2(t) \quad (20.b)$$

Donde el factor de 2 proviene de los posibles ordenes en que las ondas de bombeo ω_1 y ω_2 pueden tomarse. En general la polarización no lineal para un proceso particular puede escribirse como:

$$\mathcal{P}^{(q)}(t) = g \chi^{(q)} E_1(t) \dots \dots E_q(t) \quad (21)$$

Donde el factor de degeneración g corresponde al número de permutaciones distintas de los campos incidentes. Para polarizaciones de tercer orden estos factores son: 1, 3 y 6 para uno, dos y tres campos de bombeo distintos respectivamente. Es

posible, de la misma manera; expresar la amplitud de la polarización no lineal en términos de las amplitudes de las distintas componentes del campo. Así la amplitud de una polarización no lineal a frecuencia $\omega_1 = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n$ podrá ser descrita como:

$$P^{NL}(\omega_1) = \chi^{(n)}(\omega_1; \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n) A_1 A_2 \dots A_n \quad (22)$$

5. Propiedades de las susceptibilidades no lineales.

Antes de proceder a la solución de las ecuaciones (18) y (19) para sistemas específicos se consideran algunas propiedades de las susceptibilidades no lineales presentes en la Eq.(18), aplicadas a una componente de Fourier de frecuencia ω de la polarización total.

5.1. Propiedades tensoriales simétricas espaciales.

Las ecuaciones en las secciones precedentes fueron escritas como si todas las cantidades fueran escalares. En realidad los campos eléctricos son vectores y la susceptibilidad de orden n es un tensor de rango $(n+1)$ que posee, en general, 3^{n+1} componentes. Tomando en cuenta esto, la ecuación (18) expresa a una componente de Fourier a frecuencia ω de la polarización dipolar total $\vec{P}(\omega)$ como:

$$\begin{aligned} \vec{P}(\omega) &= \vec{P}^1(\omega) + \vec{P}^2(\omega) + \vec{P}^3(\omega) + \dots \\ \vec{P}(\omega) &= \chi^{(1)}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega) + \chi^{(2)}(\omega; \omega_1, \omega_2) : \vec{E}(\omega_1) \vec{E}(\omega_2) + \\ &\quad \chi^{(3)}(\omega; \omega_1, \omega_2, \omega_3) : \vec{E}(\omega_1) \vec{E}(\omega_2) \vec{E}(\omega_3) + \dots \end{aligned} \quad (23)$$

Donde $\omega_1 + \omega_2 = \omega$ y $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = \omega$. El subrayado en las susceptibilidades indica su carácter tensorial.

En términos de la i -ésima componente del vector $\vec{P}(\omega)$, la ecuación anterior se expresa como:

$$\begin{aligned} P_i(\omega) &= \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j(\omega) + \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) + \\ &\quad \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3) + \dots \end{aligned} \quad (24)$$

En donde $E_j(\omega_m)$ representa, aquí, la j -ésima componente del vector campo eléctrico a frecuencia ω_m (i, j, k, l toman valores

x, y, z). En la ecuación anterior pueden eliminarse los signos de sumatoria utilizando la convención de suma de Einstein; que afirma:

Si un subíndice se repite en un término, esto indica la suma sobre dicho índice.

Luego para $i=x$; $P_x(\omega)$ toma la forma de:

$$P_x(\omega) = \chi_{xj}^{(1)} E_j(\omega) + \chi_{xjkl}^{(2)} E_j(\omega_m) E_k(\omega_n) + \chi_{xjkl}^{(3)} E_j(\omega_r) E_k(\omega_s) E_l(\omega_t) + \dots \quad (25)$$

Para facilitar la comprensión en las ecuaciones anteriores se ha reducido el número de componentes del campo eléctrico que intervienen en la producción de $\mathcal{P}(\omega)$ a solo 5 frecuencias, a saber, $\omega_m, \omega_n, \omega_r, \omega_s$ y ω_t (tales que $\omega = \omega_m + \omega_n$ y $\omega = \omega_r + \omega_s + \omega_t$); con polarizaciones no lineales obtenidas por mezclado de frecuencia suma. Sin embargo, la definición puede extenderse a un número indefinido de componentes del campo eléctrico:

$$\begin{aligned} \bar{\mathcal{P}}(\omega) &= \chi^{(1)} \cdot \bar{E}(\omega) + \sum_{mn} \chi^{(2)}(-\omega, \omega_m, \omega_n): \bar{E}(\omega_m) \bar{E}(\omega_n) + \\ &\sum_{rst} \chi^{(3)}(-\omega, \omega_r, \omega_s, \omega_t): \bar{E}(\omega_r) \bar{E}(\omega_s) \bar{E}(\omega_t) + \dots \quad (26) \end{aligned}$$

Con la posibilidad de incluir la generación de \mathcal{P}^{NL} por procesos de mezclado de diferencia (por ejemplo $\mathcal{P}^{(2)}(\omega) = \chi^{(2)}(-\omega, \omega_m, -\omega_n): E(\omega_m) E(-\omega_n)$) invirtiendo el signo de las frecuencias $\omega_m, \omega_n, \omega_r, \omega_s, \omega_t$.

Aunque en la mayor parte de las veces se ignorará el carácter tensorial de las ecuaciones; quitando los subíndices y tratando todas las cantidades como si fueran verdaderamente escalares; en ocasiones se hará referencia a ciertas propiedades tensoriales de las susceptibilidades.

5.1.1. Propiedades de simetría en medios isotrópicos.

5.1.1.a. Procesos de orden par.

Una de las propiedades importantes de $\chi_{ijk}^{(2)}$ es que ella se anula en medios con centro de inversión, esto es, en medios que poseen un origen respecto al cual la transformación $x_i = -x'_i$ de todo vector del sistema coordenado deja al medio sin sufrir cambio. Ejemplos de tales medios son los cristales con estructura NaCl. La prueba de esta propiedad es sencilla (puede verse en el

Reintjes, pp.15-16) extendiéndose el resultado a todas las susceptibilidades dipolares de orden par, que también se anularán en medios con simetría de inversión.

5.1.1.b. Susceptibilidad de tercer orden.

En medios isotrópicos (por ejemplo, líquidos y gases), la susceptibilidad no lineal de menor orden es $\chi^{(3)}$; tiene en general 81 componentes tensoriales; pero la simetría de inversión reduce estas a 21 elementos no nulos.

Por otra parte, se puede demostrar que no hay generación de terceros armónicos al irradiar un medio isotrópico con luz polarizada circularmente. Esta propiedad es útil para suprimir efectos no lineales indeseables.

5.2. Simetrías de permutación.

Puesto que ningún significado físico se le atribuye al orden con el cual los campos incidentes a diferentes frecuencias son escritos en la ecuación (21), las susceptibilidades no lineales permanecerán inalteradas cuando los índices y las frecuencias de los campos incidentes en el medio sean simultáneamente intercambiados. Por ejemplo; la susceptibilidad de segundo orden obedece la relación:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) = \chi_{ikj}^{(2)}(-\omega_3, \omega_2, \omega_1) \quad (27)$$

Donde $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$.

La propiedad es llamada simetría de permutación intrínseca.

Si no existe resonancia entre las transiciones del material y las frecuencias incidentes o generadas; o sus múltiplos; o combinaciones suma o diferencia; las susceptibilidades no lineales satisfacen otro tipo de simetría de permutación, llamada simetría de permutación total. Bajo este tipo de simetría las susceptibilidades permanecen inalteradas bajo interacciones simultáneas de todas las frecuencias y los índices. Para la susceptibilidad de segundo orden esta propiedad se puede expresar como:

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) &= \chi_{kji}^{(2)}(-\omega_2, -\omega_1, \omega_3) \\ &= \chi_{jik}^{(2)}(-\omega_1, \omega_3, -\omega_2) \end{aligned} \quad (28)$$

Donde $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$.

8.3. Correcciones de campos locales.

Se han discutido las susceptibilidades como si los campos a los cuales ellas responden sean los mismos campos que inciden en el medio. Un análisis microscópico muestra que el campo visto por un átomo o molécula cualquiera del medio consiste de un campo despolarizante debido a la polarización de todos los otros átomos o moléculas, además de los campos incidentes. Estos campos despolarizantes conducen a correcciones del campo local para las distintas susceptibilidades de una manera análoga a las correcciones de campo local que se utilizan para susceptibilidades lineales.

Para medios isotrópicos tales como gases o líquidos los efectos de campos despolarizantes pueden explicarse multiplicando cada componente de campo y la polarización generada por un factor:

$$L = \frac{\epsilon(\omega_i) + 2}{3} \quad (29)$$

Donde $\epsilon(\omega_i)$ es la constante dieléctrica a frecuencia ω_i .

Una susceptibilidad macroscópica puede construirse transfiriendo estos factores de los campos a las susceptibilidades atómicas o moleculares. Así se tiene:

$$\text{Lineal: } \chi_{\text{mac}}^{(1)} = \left[\frac{\epsilon(\omega) + 2}{3} \right]^2 \chi_{\text{mic}}^{(1)}(\omega)$$

$$\text{Segundo orden: } \chi_{\text{mac}}^{(2)} = \left[\frac{\epsilon(\omega_1) + 2}{3} \right] \left[\frac{\epsilon(\omega_2) + 2}{3} \right] \left[\frac{\epsilon(\omega_3) + 2}{3} \right] \chi_{\text{mic}}^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2).$$

$$\text{Tercer orden: } \chi_{\text{mac}}^{(3)} = \prod_{i=1, \dots, 4} \left[\frac{\epsilon(\omega_i) + 2}{3} \right] \chi_{\text{mic}}^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3).$$

(30)

Son estas susceptibilidades macroscópicas las que deben usarse en las ecuaciones (4)-(18).

En medios no rarificados, tales como líquidos y cristales, las correcciones son mucho mayores, esto puede ocasionar efectos significativos en la relación entre las susceptibilidades obtenidas experimentalmente y las calculadas de teorías macroscópicas. De cualquier manera las correcciones no afectan la forma (18) de la polarización y pueden ignorarse en las subsecuentes discusiones.

6. Efectos no lineales específicos.

Frecuentemente los procesos ópticos específicos se pueden asociar con las componentes individuales de las susceptibilidades lineal y no lineal. Por ejemplo, el primer término de la ecuación

(16) describe la respuesta dipolar lineal al medio y contiene sólo aquellas frecuencias que están presentes en la radiación incidente. Su parte real produce un índice de refracción lineal, mientras que su parte imaginaria es responsable de la absorción lineal (o ganancia en medios con inversión de población). La dispersión elástica lineal que es dispersión sin cambio de frecuencia, también se describe por este término.

Varias formas de dispersión inelástica lineal, tales como la Raman, Brillouin, Rayleigh (rotante) espontáneas (que producen dispersión de luz a una longitud de onda distinta de la luz incidente) involucran excitación de modos internos del medio y no es posible que se incluyan en la parte imaginaria de $\chi^{(1)}$.

El término de segundo orden $\chi^{(2)}E^2$ produce frecuencias distintas a las de las ondas incidentes.

Si la luz incidente tiene radiación a frecuencias ω_m y ω_n se pueden identificar las siguientes amplitudes de la polarización de segundo orden usando la notación de las Ecs. (5) y (6):

$$P_i(\omega_3=2\omega_m) = \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_m, \omega_n) A_j^{(\omega_m)} A_k^{(\omega_m)}$$

$$P_i(\omega_3=\omega_m+\omega_n) = 2 \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_m, \omega_n) A_j^{(\omega_m)} A_k^{(\omega_n)}$$

$$P_i(\omega_3=\omega_m-\omega_n) = 2 \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_m, -\omega_n) A_j^{(\omega_m)} \left[A_k^{(\omega_n)} \right]^*$$

$$P_i(\omega_3=0) = 2 \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_3, \omega_m, -\omega_m) A_j^{(\omega_m)} \left[A_k^{(\omega_m)} \right]^* \quad (21)$$

Aquí $A_j^{(\omega_m)}$ es la amplitud de la j -ésima componente del campo a frecuencia ω_m y P_i es la amplitud de la i -ésima componente de la polarización no lineal.

El primero de estos términos representa la generación de segundos armónicos, los dos siguientes representan el mezclado de frecuencia suma y diferencia. El último término representa rectificación óptica.

Identificación similar se puede hacer para interacciones de tercer orden.

Si la radiación incidente contiene las frecuencias ω_m , ω_n y ω_p ; las siguientes componentes de la polarización se observan:

Generación de terceros armónicos.

$$P_i(\omega_4=3\omega_m) = \chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_4, \omega_m, \omega_m, \omega_m) A_j^{(\omega_m)} A_k^{(\omega_m)} A_l^{(\omega_m)} \quad (22)$$

Mezclado de frecuencia suma y diferencia.

$$P_i(\omega_4=2\omega_m+\omega_n) = 3 \chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_4, \omega_m, \omega_m, \omega_n) A_j^{(\omega_m)} A_k^{(\omega_m)} \left[A_l^{(\omega_n)} \right]$$

$$P_i(\omega_4=2\omega_m-\omega_n) = 3 \chi_{ijkl}^{(3)}(-\omega_4, \omega_m, \omega_m, -\omega_n) A_j^{(\omega_m)} A_k^{(\omega_m)} \left[A_l^{(\omega_n)} \right]^*$$

$$\begin{aligned}
 P_i(\omega_4 = \omega_m + \omega_n + \omega_p) &= 6 \chi_{ijkl}^{(3)} C(-\omega_4, \omega_m, \omega_n, \omega_p) A_j^{\omega_m} A_k^{\omega_n} A_l^{\omega_p} \\
 P_i(\omega_4 = \omega_m + \omega_n - \omega_p) &= 6 \chi_{ijkl}^{(3)} C(-\omega_4, \omega_m, \omega_n, -\omega_p) A_j^{\omega_m} A_k^{\omega_n} \left[A_l^{(\omega_p)}\right]^* \\
 P_i(\omega_4 = \omega_m - \omega_n - \omega_p) &= 6 \chi_{ijkl}^{(3)} C(-\omega_4, \omega_m, -\omega_n, -\omega_p) A_j^{\omega_m} \left[A_k^{\omega_n}\right]^* \left[A_l^{(\omega_p)}\right]^* \quad (33)
 \end{aligned}$$

Efectos de auto-acción:

Auto-enfoque y auto-desenfoco (índice de refracción no lineal).

$$P_i(\omega_m) = 3 \operatorname{Re} \left\{ \chi_{ijkl}^{(3)} C(-\omega_m, \omega_m, \omega_m, -\omega_m) \right\} A_i^{\omega_m} \|A_k^{\omega_m}\|^2 \quad (34.a)$$

Absorción de 2 fotones.

$$P_i(\omega_m) = 3 \operatorname{Im} \left\{ \chi_{ijkl}^{(3)} C(-\omega_m, \omega_m, \omega_m, -\omega_m) \right\} A_i^{\omega_m} \|A_k^{\omega_m}\|^2 \quad (34.b)$$

Mezclado degenerado de 4 ondas.

$$P_i(\omega_m) = 3 \chi_{ijkl}^{(3)} C(-\omega_m, \omega_m, \omega_m, -\omega_m) A_j^{\omega_m} A_k^{\omega_m} \left[A_l^{\omega_m}\right]^* \quad (35)$$

Efectos Raman:

Efecto Kerr inducido Raman.

$$P_i(\omega_m) = 6 \operatorname{Re} \left\{ \chi_{ijkl}^{(3)} C(-\omega_m, -\omega_m, \omega_s, -\omega_s) \right\} A_i^{\omega_m} \|A_k^{\omega_s}\|^2 \quad (36)$$

Dispersión Raman-Stokes.

$$P_i(\omega_s) = 6 \operatorname{Im} \left\{ \chi_{ijkl}^{(3)} C(-\omega_s, -\omega_s, \omega_L, -\omega_L) \right\} A_i^{\omega_s} \|A_k^{\omega_L}\|^2 \quad (37)$$

Dispersión Raman-Anti-Stokes.

$$P_i(\omega_{AS}) = 6 \operatorname{Im} \left\{ \chi_{ijkl}^{(3)} C(-\omega_{AS}, \omega_L, \omega_L, -\omega_s) \right\} A_i^{\omega_{AS}} A_k^{\omega_L} \left[A_l^{\omega_s}\right]^* \quad (38)$$

Los dos últimos procesos Raman ocurren primariamente cuando la diferencia de las frecuencias incidentes es igual a una frecuencia de excitación del material.

$$\omega_s = \omega_L - \omega_s$$

En las últimas dos expresiones las designaciones de las frecuencias ópticas se cambian para conformar la notación usual de interacciones Raman: L=Láser, s=Stokes y AS=anti-Stokes.

Por lo que respecta al efecto Brillouin, este es un proceso similar al efecto Raman, con la diferencia de que las vibraciones moleculares son sustituidas por oscilaciones acústicas.

7. Cristales anisotropicos.

La mayoría de los materiales usados para la generación de procesos no lineales de segundo orden son cristales, muy en especial cristales anisotrópicos. La manipulación de las propiedades ópticas de los cristales anisotrópicos mediante la aplicación de calor, presión, campos eléctricos externos, etc., ha permitido obtener procesos no lineales de gran eficiencia. Restringiéndose el estudio en los siguientes capítulos a este tipo de materiales, se hace necesario mencionar algunas de sus principales características.

7.1. Propagación de radiación electromagnética en cristales anisotropicos.

En un cristal anisotrópico la polarización inducida por un campo eléctrico y el campo mismo no son necesariamente paralelas. El vector de desplazamiento eléctrico \vec{D} y el campo eléctrico \vec{E} están consecuentemente relacionados por medio del tensor dieléctrico ϵ_{kl} definido por:

$$D_k = \epsilon_{kl} E_l \quad (39)$$

Donde los subíndices se refieren a coordenadas cartesianas ($k, l = x, y, z$). x, y, z están fijas con respecto a los ejes del cristal y la convención de suma sobre índices repetidos se observa.

Tomando la densidad de energía eléctrica almacenada, en un medio anisotrópico:

$$w_e = \frac{1}{8\pi} \vec{E} \cdot \vec{D} = \frac{1}{8\pi} E_k \epsilon_{kl} E_l \quad (40)$$

Los 9 términos de la ecuación (40) pueden reducirse a 6, utilizando la propiedad de simetría $\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji}$ del tensor dieléctrico, escribiéndose, entonces, w_e como:

$$8\pi w_e = \epsilon_{xx} E_x^2 + \epsilon_{yy} E_y^2 + \epsilon_{zz} E_z^2 + 2\epsilon_{yz} E_y E_z + 2\epsilon_{xz} E_x E_z + 2\epsilon_{xy} E_x E_y \quad (41)$$

Una transformación de ejes principales puede utilizarse para eliminar los últimos tres términos en (41). En el nuevo sistema coordenado la ecuación (41) se vuelve:

$$8\pi w_e = \epsilon_x E_x^2 + \epsilon_y E_y^2 + \epsilon_z E_z^2 \quad (42)$$

Donde, por supuesto, los símbolos x, y, z se refieren ahora a los nuevos ejes.

Los nuevos ejes coordenados son llamados ejes dieléctricos principales.

En el sistema coordenado dieléctrico principal el tensor ϵ_{kl} es diagonal y puede expresarse como:

$$\begin{bmatrix} D_x \\ D_y \\ D_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \epsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_z \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} \quad (43)$$

Usando (43) en (42) se obtiene:

$$8\pi w_e = \frac{D_x^2}{\epsilon_x} + \frac{D_y^2}{\epsilon_y} + \frac{D_z^2}{\epsilon_z} \quad (44)$$

Luego, las superficies de energía constantes (w_e) en el espacio D_x, D_y y D_z son elipses.

Por otra parte, examinaremos la transmisión de una onda electromagnética plana a través del cristal. Estando definida la onda por la ecuación (4.a), donde la amplitud compleja es constante y el vector de onda es igual a:

$$\vec{k} = \frac{\omega n}{c} \hat{s}$$

donde \hat{s} es un vector unitario normal al frente de onda.

Es posible para tal onda reemplazar al operador ∇ por $\left(\frac{i\omega n}{c}\right) \hat{s}$ y $\frac{d}{dt}$ por $-i\omega$. Entonces para un cristal no magnético y no conductor las ecuaciones de Maxwell (1.a) y (1.b) se convierten en:

$$\vec{H} \times \hat{s} = \frac{1}{n} \vec{D} \quad (45.a)$$

$$\vec{E} \times \hat{s} = -\left(\frac{1}{n}\right) \vec{H} \quad (45.b)$$

De la ecuación (45.a) se nota que \vec{D} es perpendicular a \vec{H} y a \hat{s} . De la ecuación (45.b) se sigue que \vec{H} es perpendicular a \vec{E} y a \hat{s} . Por lo tanto, \vec{D} y \vec{H} constituyen una onda transversal apropiada; y \vec{D}, \hat{s} y \vec{E} están todos en un plano perpendicular a \vec{H} . Pero $\vec{E} \cdot \vec{H}$, el vector de Poynting, no es paralelo a \hat{s} , cae en el mismo plano que \hat{s}, \vec{D} y \vec{E} ; y es perpendicular a \vec{E} . Esto significa que la dirección del flujo de energía y la normal no son paralelas (figura 4).

Combinando las ecuaciones de Maxwell (45) es posible derivar los siguientes resultados (la demostración se encuentra en Ref. 93 capítulo 18).

1) En una dirección arbitraria de propagación \hat{s} se pueden

transmitir sólo 2 ondas planas linealmente polarizadas \vec{D}_1 y \vec{D}_2 ; con \vec{D}_1 y \vec{D}_2 en direcciones mutuamente ortogonales.

- 2) En general estas ondas se propagan con velocidades distintas c/n_1 y c/n_2 , donde n_1 y n_2 son los índices vistos por las diferentes polarizaciones.

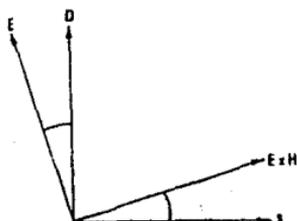


FIGURA 4. ANGULO ENTRE LA NORMAL A LA ONDA Y LA DIRECCIÓN DEL RAYO. \vec{H} ES PERPENDICULAR AL PLANO DE LA FIGURA, APUNTANDO HACIA ARRIBA.

7.2. Elipsoide indicial.

Para encontrar las direcciones permitidas de \vec{D}_1 y \vec{D}_2 y los correspondientes índices n_1 y n_2 para una dirección arbitraria de propagación \vec{s} regresemos a la ecuación (44), sustituyendo en ellas $D_1/\sqrt{8\pi\omega} = x$; etc.

$$\frac{x^2}{\epsilon_x} + \frac{y^2}{\epsilon_y} + \frac{z^2}{\epsilon_z} = 1$$

Y puesto que $n = \sqrt{\epsilon}$, se definen los índices de refracción principales por $n_1 = \sqrt{\epsilon_1}$ y se escribe:

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1$$

(46)

La ecuación (46) representa una elipsoide con ejes mayores en las direcciones x , y , z . Es conocida como *elipsoide indicial* o *indicatriz óptica* y se usa para encontrar las dos direcciones permitidas de polarización y los índices en estas direcciones. Esto se hace como sigue:

A través del centro de la elipsoide se dibuja un plano perpendicular a la dirección s . La intersección de este plano y la elipsoide es una elipse. Los dos ejes de esta elipse son paralelos a las dos direcciones de polarización y la longitud de cada eje es igual al doble del índice de refracción en esta dirección.

A partir de la indicatriz se pueden definir dos tipos de cristales anisotrópicos:

Si los tres ejes de la indicatriz son distintos, el cristal es llamado *biaxial*, ya que en este caso dos ejes ópticos pueden definirse (la definición de eje óptico se da más adelante).

Si la indicatriz es una elipsoide de revolución (i.e., si dos de los ejes son iguales), el cristal es *uniaxial* y el eje óptico es perpendicular al plano de los dos ejes iguales.

Un *eje óptico* se define como la dirección de la normal a la *onda* en la cual el índice de refracción es independiente de la dirección de polarización; en otras palabras, es la dirección perpendicular a la sección transversal circular de la indicatriz.

Si un cristal es isotrópico o anisotrópico, y, en el último de los casos, si es uniaxial o biaxial, se determina por la simetría del cristal. Así cristales con simetría cúbica son siempre isotrópicos. Cristales con simetría trigonal, tetragonal y hexagonal son siempre uniaxiales; y cristales con simetría ortorrómbica, monoclinica y triclinica son siempre biaxiales. En la siguiente sección se restringirá la discusión al caso más frecuentemente encontrado de birrefringencia, la de cristales uniaxiales.

7.3. Propagación en cristales uniaxiales.

En cristales uniaxiales la ecuación de la elipsoide indicial (46) se simplifica a:

$$\frac{x^2}{n_o^2} + \frac{y^2}{n_o^2} + \frac{z^2}{n_e^2} = 1$$

(47)

Donde se escogió el eje z como eje óptico (también referido como el *eje de simetría*). n_o es el índice ordinario de refracción;

mientras n_o es el extraordinario. Si $n_x < n_y$ se tiene un cristal uniaxial (ópticamente) negativo; mientras que en un cristal positivo $n_x > n_o$.

En la figura (5) se muestra la elipsoide indicial para un cristal uniaxial positivo.

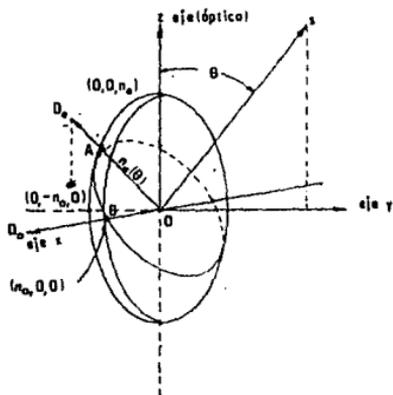


FIGURA 5. CONSTRUCCION PARA ENCONTRAR LOS INDICES DE REFRACCION Y LAS DIRECCIONES DE POLARIZACION PERMITIDAS PARA UNA DIRECCION DE PROPAGACION DADA POR S. LA FIGURA SE MUESTRA PARA UN CRISTAL UNIAXIAL CON $n_x = n_y = n_o$, SIENDO Z EL EJE OPTICO.

La dirección de propagación es a lo largo de s. Puesto que la elipsoide en este caso es invariante para una rotación respecto al eje z; la proyección del vector s sobre el plano x-y se escoge que coincida con el eje x.

De acuerdo con el "método" dado anteriormente primero se encuentra la elipse de intersección entre el plano perpendicular a la dirección de propagación y la elipsoide indicial. La longitud del semieje mayor OA es igual al índice de refracción

$n_e(\theta)$ del rayo extraordinario, cuyo vector desplazamiento eléctrico $\vec{D}_e(\theta)$ es paralelo a \vec{OA} . El rayo ordinario está polarizado (i.e., tiene su vector \vec{D}_o) a lo largo de \vec{OB} y su índice de refracción es igual a n_o .

Es claro de la figura (5) que cuando el ángulo θ entre el eje óptico y la dirección de propagación s se cambia, la dirección de polarización del rayo ordinario permanece fija (a lo largo del eje x en la figura) y su índice de refracción es igual a n_o .

La dirección de \vec{D}_e , por otro lado, depende, como se muestra, de θ .

El índice de refracción varía de $n_e(\theta) = n_o$ para $\theta=0$, a $n_e(\theta) = n_e$ para $\theta=90^\circ$. El índice de refracción $n_e(\theta)$ del rayo extraordinario es igual a \vec{OA} , el cual, de acuerdo con la figura (5), está dado por:

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (48)$$

Las superficies tridimensionales dadas por los índices $n_e(\theta, \phi)$ y $n_o(\theta, \phi)$ como una función de la dirección de la normal a la onda (θ, ϕ) son llamadas las superficies normales. Tales superficies pueden construirse de la elipsoide indicial por los métodos dados anteriormente.

Para un cristal uniaxial el ángulo azimutal ϕ es redundante y la superficie normal llega a ser una elipsoide de revolución respecto al eje óptico z . Las curvas de intersección de estas elipsoides con el plano $s-z$ se muestran en la figura (6) para un cristal uniaxial positivo ($n_e > n_o$). La curva exterior $n_e(\theta)$ es una gráfica de la ecuación (48).

Gráficas como la figura (6) son muy útiles, puesto que ellas conducen a una visión de los E índices. La orientación de los vectores desplazamiento también se muestra. $\vec{D}_e(\theta)$ está en el plano $s-z$; mientras que el rayo ordinario hace un ángulo recto con este plano.

Aunque redundante en los construcción de superficies normales, el ángulo azimutal ϕ tiene gran importancia en la obtención de procesos eficientes no lineales de segundo orden. De hecho, como se verá más adelante, una vez elegido el tipo de acoplamiento de fase para la generación del efecto óptico no lineal particular, es la elección de ϕ lo que maximiza la intensidad de dicho efecto (ver ecuación 3-27, 3-28 y tabla 4.1).

Respecto a la energía de los rayos, se puede demostrar que esta fluye en la dirección de la normal a las superficies $n_e(\theta, \phi)$ y $n_o(\theta, \phi)$. Lo anterior significa que la energía de la onda extraordinaria fluye a un ángulo ρ (ángulo de doble refracción) respecto a la dirección s de propagación de fase; donde el ángulo

ρ y la dirección del rayo extraordinario se muestran en la figura (6).

$$\tan \rho = \frac{1}{\sin \theta} \left[n_o(\theta) \right] \frac{(n_o)^2 - (n_e)^2}{(n_o n_e)^2} \sin 2\theta \quad (49)$$

si q es el ángulo entre la dirección del rayo-e y el eje óptico, se tiene que:

$$\tan q = \left(\frac{n_o}{n_e} \right)^2 \tan \theta$$

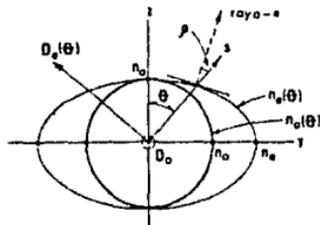


FIG. 6. LA INTERSECCION DEL PLANO S-Z CON LAS SUPERFICIES NORMALES PARA UN CRISTAL UNIAxIAL POSITIVO ($n_o > n_e$).

Capítulo 3. INTERACCIONES NO LINEALES DE TRES ONDAS.

Contenido.

1. Introducción.....	56
2. Oscilador anarmónico.....	59
3. Extensión a tres dimensiones y a tres campos mutuamente interactuantes.....	63
4. Regla de Miller y coeficiente experimental.....	64
5. Contracción de índices.....	65
6. Simetría del cristal.....	66
7. Definición de d_{eff}	68
8. Un ejemplo.....	69
9. Ecuaciones de amplitud acopladas.....	70
10. Las relaciones de Manley-Rowe.....	75
11. Generación de segundos armónicos.....	77
12. Relación entre d_{ij} y el coeficiente electro-óptico lineal r_{ij}	80
13. Ondas de luz en la frontera de un medio no lineal.....	82
14. Dimensiones.....	85

1. Introducción.

Los procesos no lineales producidos por el término de segundo orden $\chi^{(2)}$ de la susceptibilidad son conocidos, en general, como interacciones de tres ondas, ya que en ellos siempre interactúan tres ondas electromagnéticas.

Hay cuatro procesos de interés que implican interacciones de tres ondas, ellas son:

- 1) Mezclado de frecuencia suma o conversión ascendente (al cual pertenecen la generación de segundos armónicos).
- 2) Mezclado de frecuencia diferencia (a la cual pertenece la rectificación óptica).
- 3) Generación paramétrica.
- 4) Efecto Pockels.

Los 3 primeros procesos se muestran esquemáticamente en la siguiente figura.

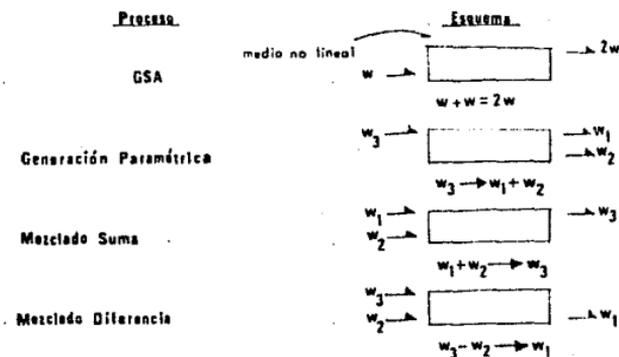


FIG. 1. DIAGRAMA ESQUEMATICO DE LAS INTERACCIONES DE TRES ONDAS.

Los procesos de mezclado de frecuencia se obtienen cuando al incidir dos rayos de luz ω_1 y ω_2 en un medio no lineal se

producen polarizaciones no lineales a las frecuencias $\omega_1 + \omega_2$; $\omega_1 - \omega_2$; $2\omega_1$; $2\omega_2$ y $\omega = 0$ (la GSA y la rectificación óptica se obtendrían como procesos únicos si $\omega_1 = \omega_2$). Estas polarizaciones no lineales generan a su vez ondas de luz secundarias a las mismas frecuencias.

Para la observación de las ondas a las 5 frecuencias es necesario que los 2 rayos incidentes de bombeo tengan intensidades del mismo orden de magnitud que los campos interatómicos. Sin embargo, si sólo uno de los rayos incidentes tiene alta intensidad, esto sólo produce que la GSA del rayo débil deje de observarse (i.e., la GSA requiere de alta intensidad incidente para su detección). Por lo tanto; aun cuando el rayo ω_2 sea de baja intensidad la conversión ascendente $\omega_1 + \omega_2$ y el mezclado diferencia $\omega_1 - \omega_2$ pueden todavía crearse, mientras la intensidad del rayo ω_1 sea grande.

Lo anterior ha permitido utilizar la polarización no lineal del proceso de conversión ascendente para detectar señales débiles infrarrojas (e incoherentes), las cuales no poseen detectores sensibles; transformando sus frecuencias al rango visible en donde pueden ser detectadas con un fotomultiplicador.

El proceso de generación paramétrica consiste en la generación de polarizaciones no lineales a las frecuencias ω_1 y ω_2 con la consecuente creación de luz a estas frecuencias, cuando solo incide en el medio no lineal una onda intensa de bombeo a la frecuencia $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. En otras palabras; aun en ausencia de señales de entrada, la generación paramétrica permite a un cristal no lineal emitir radiación espontánea a las frecuencias ω_1 y ω_2 , si es irradiado por una onda intensa de bombeo a $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$.

La generación paramétrica es utilizada en medios no lineales dentro de cavidades resonantes como base del funcionamiento de los osciladores paramétricos sintonizables; en los cuales la radiación coherente ω_3 de un láser generada en una parte del espectro, se convierte a radiación ω_1 y ω_2 en otra parte diferente de la región espectral. De esta manera la radiación coherente llega a ser disponible en rangos espectrales que de otra manera serían inaccesibles mediante láseres primarios.

El efecto electro-óptico lineal o efecto Pockels se obtiene cuando una de las dos ondas incidentes ω_1 y ω_2 , se sustituye por un campo eléctrico de corriente directa $\omega = 0$. En tal efecto se describe la variación lineal de las características de propagación de una onda electromagnética ω_1 incidente en el medio no lineal, cuando un campo eléctrico $\omega_2 = 0$ se aplica en las paredes del cristal. Estas variaciones pueden ser caracterizados

especificando los cambios en los elementos ϵ_{ij} de la constante dieléctrica bajo la aplicación del campo $\omega_2 = 0$. Una aproximación equivalente consiste en especificar los cambios en las constantes $(1/n^2)_{ij}$ que aparecen en la elipsoide indicial.

En un sistema coordenado general (i.e., no principal), la elipsoide indicial de la Ec.(2-48) puede escribirse como:

$$\left[\frac{1}{n^2} \right]_1 x^2 + \left[\frac{1}{n^2} \right]_2 y^2 + \left[\frac{1}{n^2} \right]_3 z^2 + 2 \left[\frac{1}{n^2} \right]_4 yz + 2 \left[\frac{1}{n^2} \right]_5 xz + 2 \left[\frac{1}{n^2} \right]_6 xy = 1 \quad (1)$$

El efecto electro-óptico lineal se caracteriza por una variación lineal de los coeficientes de (1) con los campos eléctricos. Esta variación se describe a partir del tensor electro-óptico r_{ij} a través de la relación:

$$\Delta \left[\frac{1}{n^2} \right]_{ij} = r_{ij} E_k \quad (2)$$

Donde $\Delta \left[\frac{1}{n^2} \right]_{ij}$ es el cambio en la constante $\left[\frac{1}{n^2} \right]_{ij}$ y donde se suma sobre índices repetidos.

El tensor electro-óptico r_{ij} se encuentra relacionado con la susceptibilidad no lineal de segundo orden $\chi^{(2)}$ (la relación se determina en el sección 12) ambas obedecen las mismas condiciones de simetría. Demostrándose que un buen cristal electro-óptico lineal es también un buen material no lineal (Ref. 93 capítulo 18).

Basados en la definición de interacciones paramétricas entre campos de oscilación y materia (citada en el texto de Yariv), la cual expresa:

"Una interacción paramétrica es aquella donde ocurre un intercambio de energía entre un número de campos de oscilación de igual (ejemplo: MD40) o de distinta frecuencia (ejemplo: GSA, dispersión Raman estimulada, etc.) debido al acoplamiento producido entre ellos por un elemento reactivo no lineal (no disipativo) del medio (ejemplo: susceptibilidad no lineal en GSA, polarizabilidad diferencial molecular en dispersión Raman estimulada, etc.) (Ref. 93, p. 329)."

Todas las interacciones de tres ondas consideradas son paramétricas, satisfaciéndose en cada una de ellas la conservación de la energía $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ (o $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ para mezclado diferencial). A diferencia de la energía, la conservación del momento fotónico $k_3 = k_1 + k_2$ (o $k_3 = k_1 - k_2$ para mezclado diferencial)

no siempre es satisfecha en cada interacción.

Es importante que la conservación de momento fotónico se cumpla en un proceso no lineal si se desea que éste sea producido con gran eficiencia. Con este fin se han ideado las llamadas técnicas de *acoplamiento de fase* entre la polarización no lineal $\chi^{(2)}$ y la onda de luz generada por ésta.

Restringiéndonos a materiales cristalinos anisotrópicos, en este capítulo se determina, en primer lugar, la polarización no lineal de segundo orden utilizando un modelo clásico de oscilador anarmónico; discutiéndose posteriormente las expresiones y propiedades de simetría de la susceptibilidad no lineal $\chi^{(2)}$. A partir de estas bases se obtiene la radiación generada por la polarización no lineal.

2. Oscilador anarmónico.

Para obtener la polarización no lineal de segundo orden $\chi^{(2)}$ se considera el modelo clásico de Lorentz con un término anarmónico. Según este modelo el medio está formado por N átomos y cada átomo posee un núcleo junto con un solo electrón.

Cuando un campo eléctrico se aplica al medio, dentro del átomo el electrón se separa del núcleo sufriendo una elongación r respecto de su posición de equilibrio. Esto induce un momento dipolar eléctrico en el átomo igual a er (donde e es la carga del átomo). Al cesar el campo, el electrón es devuelto a su posición de equilibrio por una fuerza restauradora que posee un término proporcional a la elongación r , y un término anarmónico proporcional a r^2 el cual introduce la respuesta no lineal del medio.

Si el campo eléctrico es alternante el electrón oscilará respecto a su posición de equilibrio formando junto con el núcleo un dipolo oscilante que radiará ondas de diferentes frecuencias. La respuesta de todos los átomos del medio estará resumida en la polarización dipolar eléctrica inducida $\mathcal{P}(t) = Ne\langle r \rangle$.

Para escribir la expresión matemática que representa a este modelo, considérese al electrón oscilante como un oscilador anarmónico forzado cuya ecuación de movimiento es:

$$\frac{d^2 r}{dt^2} + 2\gamma \frac{dr}{dt} + \omega_0^2 r - \nu r^2 = -\frac{e}{m} E \quad (3)$$

Aquí m es la masa del electrón, ω_0 es su frecuencia natural, γ es la constante de amortiguamiento, E es el campo eléctrico aplicado, y ν es el coeficiente no lineal del término anarmónico. El análisis del movimiento se limitará a una dimensión únicamente.

Debido al término anarmónico, la Ec.(3) no puede ser resuelta de una manera simple, de hecho no hay una solución analítica cerrada. No obstante; puesto que el término anarmónico es muy pequeño comparado con el armónico, sus efectos son también pequeños comparados con la dependencia lineal del campo de r . Por

lo tanto, se intenta una solución en la forma de serie de potencias:

$$r = r_1 + r_2 + r_3 + \dots + \text{etc.} \quad (4)$$

Donde $r_1 = a_1 E^1$ (5)

Sustituyendo la ecuación (4) en la Ec.(3) y separando términos del mismo orden en E; se encuentra:

$$\frac{d^2 r_1}{dt^2} + 2\gamma \frac{dr_1}{dt} + \omega_c r_1 = -\frac{e}{m} E \quad (6)$$

$$\frac{d^2 r_2}{dt^2} + 2\gamma \frac{dr_2}{dt} + \omega_0 r_2 = \nu r_1^2 \quad (7)$$

Así se encuentra que el término νr_1^2 en la Ec.(3) produce un desplazamiento que es no lineal en E; esta no linealidad es $r_2 = a_2 E^2$. Al sustituir términos de mayor orden en r dentro de la Ec.(3); se obtendrían no linealidades de mayor orden también.

Si el campo incidente E está compuesto de muchas componentes, cada una con su propia fase y frecuencia; tal que:

$$E = \sum_n A(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (8)$$

Sustituyendo la ecuación (8) en la ecuación (5) se encuentra:

$$\frac{dr_1}{dt} = -i a_1 \sum_n \omega_n A(\omega_n) e^{-i\omega_n t}$$

$$\frac{d^2 r_1}{dt^2} = -a_1 \sum_n \omega_n^2 A(\omega_n) e^{-i\omega_n t}$$

De donde la ecuación (6) produce:

$$-a_1 \sum_n \omega_n^2 A(\omega_n) e^{-i\omega_n t} - 2a_1 \gamma \sum_n \omega_n A(\omega_n) e^{-i\omega_n t} +$$

$$a_1 \omega_0^2 \sum_n A(\omega_n) e^{-i\omega_n t} = -\frac{e}{m} \sum_n A(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (9)$$

De cualquier manera; puesto que la suma de los términos individuales de cada frecuencia en el lado izquierdo de la ecuación (9) tienen que ser iguales a la suma de los términos de la misma frecuencia en el lado derecho, podemos escribir:

$$-a_1 \sum_n A(\omega_n) e^{-i\omega_n t} = -\frac{e}{m} \sum_n \frac{A(\omega_n) e^{-i\omega_n t}}{\omega_0^2 - 2i\omega_n \gamma - \omega_n^2}$$

Es decir:

$$r = -\frac{e}{m} \sum_n \frac{A(\omega_n) e^{-i\omega_n t}}{\omega_0^2 - 2i\omega_n \gamma - \omega_n^2} \quad (10)$$

La ecuación (10) corresponde a una respuesta lineal del medio; el electrón en este caso oscila a las mismas frecuencias ω_n de los campos presentes. Este resultado se utiliza ahora para encontrar el término del siguiente orden. Para hacer esto se sustituye la ecuación (10) en la ecuación (7), la cual puede entonces resolverse usando la relación:

$$\left[\sum_n A(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \right]^2 = \sum_m \sum_n A(\omega_m) A(\omega_n) e^{-i(\omega_m + \omega_n)t} \quad (11)$$

Donde m tiene el mismo rango de valores que n.

$$r_2 = -\frac{e^2 v}{m} \sum_m \sum_n \frac{A(\omega_m) A(\omega_n) e^{-i(\omega_m + \omega_n)t}}{F(\omega_m, \omega_n, \gamma)}$$

$$\text{Donde } F(\omega_m, \omega_n, \gamma) = (\omega_0^2 - 2i\omega_m \gamma - \omega_m^2) (\omega_0^2 - 2i\omega_n \gamma - \omega_n^2) \\ \times \left[\omega_0^2 - 2i(\omega_m + \omega_n)\gamma - (\omega_m + \omega_n)^2 \right]$$

Puesto que la polarización dipolar eléctrica puede ser escrita también como una serie de potencias:

$$p = \sum_q p^{(q)}$$

$$\text{con } p^{(q)} = -Ne r_q$$

Así se tiene que la polarización lineal es:

$$p^{(1)} = \sum_n \chi^{(1)}(\omega_n) A(\omega_n) e^{-i\omega_n t} + \text{c.c.} \quad (12)$$

$$\text{Donde } \chi^{(1)}(\omega_n) = \frac{Ne^2}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - 2i\omega_n \gamma - \omega_n^2}$$

Y para la polarización de segundo orden.

$$p^{(2)} = \sum_m \sum_{n_1} \chi^{(2)}(-[\omega_n + \omega_m], \omega_n, \omega_m) A C(\omega_n) A C(\omega_m) e^{-i(\omega_n + \omega_m)t} + c. c. \quad (13)$$

Donde

$$\chi^{(2)}(\omega_n + \omega_m) = -\frac{eV}{N^2 \epsilon^2} \left[\chi^{(1)}(\omega_m) \right] \left[\chi^{(1)}(\omega_n) \right] \left[\chi^{(1)}(\omega_n + \omega_m) \right] \quad (14)$$

Obsérvese la necesidad de agregar a la polarización no lineal obtenida el término complejo para respetar la notación establecida.

La polarización de segundo orden es debida al término no lineal $v \times^2$ en la ecuación (3). La ecuación (13) muestra que la polarización contiene términos con todas las frecuencias $(\omega_n + \omega_m)$ posibles, para valores n y m de ± 1 y ± 2 ; tal que $\omega_{-n} = -\omega_n$ lo que implica:

$$A^*(\omega_n) = A C(\omega_n) \quad (15)$$

Ordenes mayores también existen, si, por ejemplo, una no linealidad de tercer orden se añade en la ecuación (3), se encuentra un término de polarización de tercer orden conteniendo todas las frecuencias posibles $\omega_n + \omega_m + \omega_p$ para los diferentes valores de n , m y p ; y así; para ordenes mayores.

El examen de la ecuación (14) muestra que la susceptibilidad de segundo orden $\chi^{(2)}$ depende del producto de susceptibilidades de primer orden para las tres frecuencias involucradas en la interacción. Recordando que las susceptibilidades de primer orden son puramente reales en cualquier rango de frecuencias, excepto para frecuencias cercanas a la frecuencia de resonancia ω_0 . Por lo tanto; suponiendo que se opera con las tres frecuencias en regiones sin pérdida del cristal, se observa de la ecuación (14) que la susceptibilidad de segundo orden también será puramente real, $\chi^{(2)}(-[\omega_n + \omega_m], \omega_n, \omega_m) = \chi^{(2)}(\omega_n + \omega_m, -\omega_n, -\omega_m)$. Usando esta condición en la ecuación (13) e igualando m y n a ± 1 y ± 2 respectivamente, se obtienen los mismos resultados obtenidos en el capítulo anterior sec. 4.1. Ec. (18).

De aquí en adelante, para simplificar la notación, se usará \mathcal{P} y χ como representaciones de la polarización y la susceptibilidad de segundo orden; a menos que otra cosa se indique.

Las simetrías de permutación permiten una reducción drástica en el número de componentes independientes de χ . Para apreciar completamente esta reducción; primero se extenderá la teoría a tres dimensiones, tomando en cuenta la interacción de la onda generada con las ondas incidentes.

3. Extensión a tres dimensiones y a tres campos mutuamente interactuantes.

En el caso tridimensional la ecuación (13) puede escribirse como:

$$\mathcal{P}_i(\omega_n + \omega_m) = \sum \chi_{ijk}(-\omega_{n+m}, \omega_n, \omega_m) A_j(\omega_n) A_k(\omega_m) e^{-i(\omega_n + \omega_m)t} + \text{c. c.} \quad (18)$$

Donde i, j y k cada uno toma los valores x, y, z y donde $\omega_{n+m} = \omega_n + \omega_m$.

La notación $\chi_{ijk}(-\omega_{n+m}, \omega_n, \omega_m)$ no sólo expresa el origen de la polarización a frecuencia ω_{n+m} de los campos ópticos incidentes a las frecuencias ω_n y ω_m ; sino también indica la dependencia de la susceptibilidad χ de las tres frecuencias.

Ahora si se incluye la interacción de $E(\omega_{n+m})$ con $E(\omega_n)$ y con $E(\omega_m)$ se encontrarán tres interacciones para cada valor de n y m , a saber, $E(\omega_{n+m})$ generado por $E(\omega_n)$ y $E(\omega_m)$; $E(\omega_n)$ generado por $E(\omega_{n+m})$ y $E(\omega_m)$; y $E(\omega_m)$ generado por $E(\omega_{n+m})$ y $E(\omega_n)$.

Si se considerarán todas las diferentes combinaciones de la ecuación (13), se obtendrían muchas componentes de la polarización no lineal. Para limitar el número de ecuaciones se escribirán aquí sólo los términos de la polarización no lineal involucrados en la generación de frecuencia suma $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$. Estos términos son:

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_i(\omega_3) &= \chi_{ijk}(-\omega_1, -\omega_2, \omega_3) A_j(-\omega_1) A_k(\omega_2) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} \\ &+ \chi_{ijk}(-\omega_1, \omega_3, -\omega_2) A_j(\omega_3) A_k(-\omega_2) e^{-i(\omega_3 - \omega_2)t} + \text{c. c.} \\ \mathcal{P}_j(\omega_2) &= \chi_{jki}(-\omega_2, \omega_3, -\omega_1) A_k(\omega_3) A_i(-\omega_1) e^{-i(\omega_3 - \omega_1)t} \\ &+ \chi_{jki}(-\omega_2, -\omega_1, \omega_3) A_i(-\omega_1) A_k(\omega_3) e^{-i(\omega_3 - \omega_1)t} + \text{c. c.} \\ \mathcal{P}_k(\omega_3) &= \chi_{kji}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) A_i(\omega_1) A_j(\omega_2) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} \\ &+ \chi_{kji}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) A_j(\omega_2) A_i(\omega_1) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + \text{c. c.} \end{aligned} \quad (17)$$

Así $\mathcal{P}_i(\omega_3)$; por ejemplo; es la suma de nueve términos, usando, respectivamente, las susceptibilidades $\chi_{xx}, \chi_{xy}, \chi_{xz}, \chi_{yx}$, etc. Además, hay tres diferentes componentes de $\mathcal{P}_i(\omega_3)$ (i. e., $\mathcal{P}_x(\omega_3)$, $\mathcal{P}_y(\omega_3)$ y $\mathcal{P}_z(\omega_3)$). Luego, aunque se ha supuesto que ω_1, ω_2 y ω_3 están lo suficientemente alejadas de cualquier frecuencia de resonancia para que $\chi_{ijk}(-\omega_{n+m}, \omega_n, \omega_m)$ sea igual a

$\chi_{ijk}(\omega_{n+m}, -\omega_n, -\omega_m)$; hay todavía 81 susceptibilidades no lineales independientes en las tres ecuaciones (17). Afortunadamente esto no es así, puesto que gracias a la simetría de permutación total el número de componentes independientes se reduce a 18.

Las simetrías de permutación unen a efectos aparentemente sin relación. Para ilustrar esto, considérese la interacción de una onda con frecuencia ω_1 consigo misma. Además de la GSA a $2\omega_1$ se genera también una polarización directa, expresada en la ecuación (2-18.b). La susceptibilidad no lineal para esta rectificación óptica es $\chi_{ijk}(0, \omega_1, -\omega_1)$. Ahora, de la ecuación (2-28) encontramos:

$$\chi_{ijk}(0, \omega_1, -\omega_1) = \chi_{jki}(\omega_1, -\omega_1, 0) \quad (18)$$

El lado derecho de la ecuación (18) es una susceptibilidad no lineal para una interacción donde un campo directo interactúa con una onda de frecuencia ω_1 para producir una polarización no lineal a ω_1 . Esta polarización no lineal genera una onda con frecuencia ω_1 pero con una fase diferente a la fase de la onda incidente ω_1 . El resultado final es un cambio de fase en la onda transmitida, o un aparente cambio en el índice de refracción del cristal. Este fenómeno es el conocido efecto electro-óptico. Por lo tanto, los coeficientes de la rectificación óptica son iguales a los del efecto electro-óptico; a condición de que los índices sean intercambiados apropiadamente.

4. Regla de Miller y coeficiente experimental.

De la ecuación (14), generalizándola a tres dimensiones, se encuentra:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(-\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \left[\chi_{ii}^{(1)}(\omega_1) \right] \left[\chi_{jj}^{(1)}(\omega_2) \right] \left[\chi_{kk}^{(1)}(\omega_3) \right] \Delta_{ijk} \quad (19)$$

La relación fue llamada *regla de Miller* en honor a R. C. Miller, cuando éste demostró empíricamente que el parámetro Δ_{ijk} era casi constante para un amplio rango de materiales. Esta regla ha sido muy importante en la búsqueda de nuevos materiales no lineales; al afirmar básicamente que materiales con gran índice de refracción también tienen un gran coeficiente no lineal. De cualquier forma, esta propiedad no es tan ventajosa como podría parecer; y requiere de criterios adicionales que le ayuden a determinar si un cristal es un buen material no lineal.

Por otra parte; normalmente en la literatura suelen aparecer dos símbolos distintos para denotar a la susceptibilidad no lineal de segundo orden. Estos son d y χ .

En general χ es usada por los teóricos, y el coeficiente no lineal d por los experimentadores. La relación entre ambas está dada por:

$$d = \frac{1}{2} \chi(-2\omega_1, \omega_1, \omega_1)$$

O generalizándola a 3 dimensiones:

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}$$

La cual se deriva al igualar las expresiones de las polarizaciones de GSA experimental y teórica.

$$\mathcal{P}(2\omega_1) = d \sum_i \epsilon_i^2 \cos [2(\omega_1 t + k_1 z)]$$

$$\mathcal{P}(2\omega_1) = \chi(-2\omega_1, \omega_1, \omega_1) A(\omega_1) A(\omega_1) e^{-2i\omega_1 t} + c.c.$$

$$\text{Donde } A(\omega_1) = \frac{1}{2} \sum_i \epsilon_i e^{i\phi_i} \quad \text{con } \phi_i = 0$$

5. Contracción de índices.

La consideración de la ecuación (18) sirve para enfatizar la arbitrariedad de la secuencia con la cual se enlistan ω_1 y $-\omega_1$.

Como ya se mencionó, en general, en una interacción entre dos campos $E(\omega_1)$ y $E(\omega_2)$ la secuencia de estos campos no da una diferencia físicamente discernible. No se puede afirmar que un campo fue aplicado primero y el otro después. Estrictamente hablando, entonces, se puede modificar las ecuaciones de manera que muestren este punto. Esto se puede hacer operando d sobre un vector columna F el cual es función de $E(\omega_1)$ y $E(\omega_2)$ independientemente de su secuencia (en la siguiente expresión de F la repetición de un índice no representa una sumatoria sobre dicho índice, por lo tanto, se aclara que en este caso no se sigue la notación de Einstein):

$$F_i = (1 - \frac{1}{2} \delta_{jk}) (E_j E_k + E_k E_j) \quad (20)$$

Donde δ_{jk} es el símbolo de Kronecker; $\delta_{jk} = 1$ para $j=k$ y $\delta_{jk} = 0$ para $j \neq k$.

Puesto que $d_{ijk} = d_{ikj}$ se pueden contraer los dos últimos índices ij a uno solo l utilizando la notación contraída de Voigts:

$l=1$ cuando $j=k=x$; $l=2$ cuando $j=k=y$; $l=3$ cuando $j=k=z$; $l=4$ cuando $j=y$ y $k=z$; $l=5$ cuando $j=x$ y $k=z$; $l=6$ cuando $j=x$ y $k=y$.

Aplicando esta contracción y la relación (20) a $\mathcal{P}_i = 2d_{ijk} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2)$ se escribe:

$$\mathcal{P}_i = 2d_{il} F_l \quad (21)$$

El vector columna \vec{F} fue introducido como una conveniencia matemática para asegurar que la secuencia de los 2 campos interactuantes no fuera importante. Esto podría parecer más una fineza teórica; pero tiene importancia práctica como se verá abajo.

En el caso de generación de segundos armónicos se pueden escribir las ecuaciones (20) y (21) en forma de matrices:

$$\begin{bmatrix} \mathcal{P}_x \\ \mathcal{P}_y \\ \mathcal{P}_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathcal{E}_x^2 \\ \mathcal{E}_y^2 \\ \mathcal{E}_z^2 \\ 2\mathcal{E}_x \mathcal{E}_y \\ 2\mathcal{E}_x \mathcal{E}_z \\ 2\mathcal{E}_y \mathcal{E}_z \end{bmatrix} \quad (22)$$

En el caso de generación de frecuencia suma o diferencia, de cualquier manera, la polarización producida no puede representarse en general como un producto de matrices reducidas de d_{ij} y $E_i E_j$ similar al de la ecuación (22). Por ejemplo, si la frecuencia suma se genera a partir de dos ondas, $\mathcal{E}_1(\omega_1)$ polarizada en la dirección x y $\mathcal{E}_2(\omega_2)$ polarizada en la dirección y , entonces:

$$\mathcal{P}_i(\omega_1 + \omega_2) = d_{i6} \mathcal{E}_x(\omega_1) \mathcal{E}_y(\omega_2) \quad (23)$$

El factor de 2 no aparece aquí ya que:

$$\mathcal{E}_y(\omega_1) \mathcal{E}_x(\omega_2) = 0 \quad (24)$$

Por lo tanto se debe tener precaución siempre que dos frecuencias de entrada sean físicamente separables.

6. Simetría del cristal.

Resumiendo los resultados de las secciones previas: se encuentra que la susceptibilidad d tiene un número máximo de 18 elementos tensoriales independientes, y que los cristales que poseen centro de simetría no pueden exhibir polarización de segundo orden.

De las 32 diferentes clases de cristales, 21 son no-centrosimétricos; y de éstas sólo uno no tiene ninguna simetría, ésta es la clase I del sistema triclinico. Para todas las otras clases hay una o más operaciones de simetría que transforman al cristal en si mismo. Obviamente, si una clase de cristal tiene una matriz de susceptibilidad dada, y se realiza una operación de simetría que no altere físicamente al cristal, entonces la misma operación debe dejar a la matriz sin cambio. Como resultado de esto, ciertas componentes de la matriz deben

anularse, y otras serán numéricamente iguales o de signo opuesto.

Realizando las operaciones de simetría permitidas para cada clase de cristal, se encontrará una forma dada de matriz para cada una de las 21 clases de cristales no-centrosimétricos (las 21 matrices d para las 21 clases de cristales se pueden encontrar en el apéndice 2).

Por ejemplo; el ácido iódico pertenece a la clase de cristales 222. Esta clase tiene 3 ejes dobles paralelos a los ejes x, y y z ; respectivamente. Esto significa que si tomamos un cristal ácido iódico y lo rotamos $180^\circ = 360^\circ/n$ (con $n=2$) alrededor de cualquiera estos 3 ejes, el cristal aparecerá exactamente igual que antes de la rotación. Por lo tanto, si antes de la rotación de 180° alrededor del eje z tenemos un campo en la dirección x ; el mismo campo estará aplicado en la dirección x después de la rotación. Como resultado $d_{311} E_x^2$ tiene que ser igual a $-d_{311} E_x^2$, y se sabe que esto solo es posible si $d_{311} = 0$. Similarmente, se obtiene de esta rotación que $d_{312}, d_{322}, d_{333}, d_{211}, d_{212}, d_{233}, d_{313}$ y d_{323} tienen que ser cero. Luego, un eje doble paralelo al eje z deja solo aquellos elementos tensoriales que tienen uno o tres subíndices 3 tal como d_{333} y d_{223} . Similarmente un eje doble paralelo solo deja elementos tensoriales que tienen uno o tres subíndices 1.

Tomando en cuenta todos los ejes dobles del cristal clase 222, se encuentra que solo 3 elementos tensoriales son no nulos; a saber, $d_{123}, d_{213}, d_{312}$ (o en notación contraída d_{14}, d_{25} y d_{36}). Siendo finalmente la matriz d :

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{bmatrix}$$

Una condición de simetría adicional se aplica a los procesos no lineales en los cuales la polarización no lineal es puramente electrónica en origen y el cristal no tiene pérdidas en toda la región espectral que incluye a las tres frecuencias involucradas en la interacción. Esta condición de simetría, formulada primero por Kleinman, afirma que en tales casos los elementos del tensor d_{ijk} formados de permutar libremente i, j y k , son iguales.

Notese que esta condición no es la misma que la ecuación (2-28); ya que aquí solo se permutan los índices cartesianos y no las frecuencias.

La ecuación (22) sugiere que la matriz de susceptibilidad tiene la misma forma que la matriz piezoelectrica, y

naturalmente, para una clase de cristal dado, la matriz para la susceptibilidad es homóloga con la matriz piezoeléctrica excepto por un factor de 2 en el vector columna del campo.

Hay que aclarar que no existe relación física entre d y el efecto piezoeléctrico, por lo tanto, las magnitudes de las componentes no nulas de d no se relacionan de ninguna manera con las componentes piezoeléctricas.

7. Definición de d_{eff}

En la discusión precedente se ha restringido inicialmente el gran número de componentes a 18 en el caso más general, y aun poco menos en la mayoría de los casos prácticos. No obstante, la expresión para la polarización, ecuación (16); implica todavía una suma para expresar los elementos de matriz no nulos y las direcciones de polarización de las ondas interactuantes.

Es posible simplificar aun más la notación escribiendo la nueva expresión:

$$P = d_{eff} \sum_1 \sum_2 \dots \quad (22)$$

En la cual todas las sumas ya han sido realizadas para el caso particular manejado.

La ventaja de esta notación es que reduce el problema a una dimensión. Todas las derivaciones adicionales se realizan utilizando esta no linealidad efectiva; produciendo al final una expresión simple y universal para la potencia generada.

Para condiciones experimentales dadas, la ecuación apropiada para el coeficiente no lineal efectivo d_{eff} se sustituye en esta ecuación, restaurando otra vez el aspecto total tridimensional del problema.

Una tabla de ecuaciones para d_{eff} utilizada en distintos casos se dará en el capítulo 4.

8. Un ejemplo.

Como un ejemplo de algunos de los puntos mencionados previamente, se presenta a continuación un caso particular.

Supóngase que se tienen dos ondas planas linealmente polarizadas con amplitudes reales δ' y δ'' propagándose en un cristal de cuarzo a un ángulo θ respecto al eje óptico. Supóngase además que el plano que forman el eje óptico y los rayos incidentes hace un ángulo ϕ con el eje x , y que δ' cae en este plano (rayo- e) y δ'' es perpendicular a este plano (rayo- o). Se desea conocer la polarización no lineal a la frecuencia suma debido a la interacción de estos dos campos.

De los datos de piezoelectricidad sabemos que la matriz de susceptibilidad para el cuarzo (clase 32) es:

¹ Puesto que P es la polarización para sólo una componente de frecuencia y no la polarización total no lineal, el factor de 2 de la ecuación (22) no aparece aquí.

$$\begin{bmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & -d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Escribiendo las tres componentes de la polarización no lineal, usando la forma contraída de los coeficientes, se obtiene:

$$P_1 = d_{111} \xi'_1 \xi'_1 + d_{122} \xi'_2 \xi'_2 + d_{123} \xi'_2 \xi'_3 + d_{192} \xi'_3 \xi'_2$$

$$P_2 = d_{219} \xi'_1 \xi'_3 + d_{219} \xi'_1 \xi'_3 + d_{212} \xi'_1 \xi'_2 + d_{221} \xi'_2 \xi'_1$$

$$P_3 = 0$$

Donde $d_{111} = -d_{122}$

$$d_{192} = -d_{291}$$

$$d_{212} = -d_{221} = -d_{111}$$

Las diferentes componentes del campo son:

$$\xi'_1 = \xi' \cos\theta \cos\phi$$

$$\xi'_2 = \xi' \cos\theta \sin\phi$$

$$\xi'_3 = -\xi' \sin\theta$$

$$\xi''_1 = \xi'' \sin\phi$$

$$\xi''_2 = \xi'' \cos\phi$$

$$\xi''_3 = 0 \quad (26)$$

La sustitución de la ecuación (26) en la ecuación (25) da:

$$P_1 = \xi' \xi'' (-d_{11} \cos\theta \sin 2\phi - d_{14} \sin\theta \cos\phi)$$

$$P_2 = \xi' \xi'' (-d_{11} \cos\theta \cos 2\phi - d_{14} \sin\theta \sin\phi)$$

Notese que, puesto que $\xi''_3 = 0$, los dos términos conteniendo $\sin\phi$ tienen d_{14} y no $2d_{14}$; como podría haberse deducido de la matriz contraída. Esto enfatiza el comentario hecho en las ecuaciones (23) y (24).
Ahora, puesto que:

$$P_{\perp} = P_1 \sin\phi - P_2 \cos\phi$$

$$P_{\parallel} = (P_2 \sin\phi + P_1 \cos\phi) \cos\phi + P_3 \sin\phi$$

Donde P_{\parallel} es la polarización no lineal paralela a ξ'' , tenemos:

$$P_{\parallel} = \xi' \xi'' (d_{11} \cos\theta \sin 3\phi - d_{14} \sin\phi \cos\theta) \quad (27)$$

$$P_{\perp} = \delta' \delta'' (d_{11} \cos \theta \cos 3\phi) \quad (28)$$

La validez de estas ecuaciones puede ser verificada por un examen directo. En cuarzo el eje z es un eje con simetría triple. A esto se debe la apariencia del argumento 3ϕ , el cual muestra que P_{\perp} , por ejemplo, es el mismo para $\phi=0^{\circ}$, 120° , 240° , etc.

Las ecuaciones (27) y (28) revelan la forma complicada de la no linealidad en este ejemplo. En nuestra notación usando no linealidad efectiva, se escribe $P = d_{\text{eff}} \mathcal{E}''$ para las ecuaciones (27) y (28) y entonces al final del cálculo, se sustituye el valor correcto de d_{eff} . En este caso la elección dependiera de si P_{\parallel} o P_{\perp} se necesitan.

La ecuación (27) y (28) pudieron haberse obtenido rotando el primer tensor un ángulo ϕ alrededor del eje z y entonces rotarlo nuevamente un ángulo θ alrededor del eje y. Los dos campos entonces caerían en las direcciones x y z; y así las polarizaciones se encontrarían por una simple multiplicación del tensor rotado por \mathcal{E}_1 y \mathcal{E}_2 . Puesto que solo interesan P_{\parallel} y P_{\perp} en el nuevo sistema coordenado; únicamente seis términos del tensor rotado tendrían que calcularse:

$$d_{11}, d_{12}, d_{22}, d_{31}, d_{15}, d_{25}$$

Aun así, este método consume más tiempo que el usado previamente.

De aquí en adelante, a menos que otra cosa se indique, se usará d para la no linealidad efectiva.

9. Ecuaciones de amplitud acopladas.

Introducidas todas las posibles simplificaciones, estamos listos para derivar las ecuaciones para la radiación generada por la polarización no lineal.

Claramente, en cualquier punto, la disminución o el incremento de la amplitud de una onda a una frecuencia particular depende de las amplitudes de las otras dos ondas. Para interacción no lineal de tres frecuencias, entonces, se deben buscar tres ecuaciones de amplitud acopladas, cada una expresando la razón de crecimiento, o decaimiento, de los campos a una frecuencia como una función de los campos a las otras dos frecuencias. Además, se debe expresar en cada una de estas ecuaciones alguna medida de la diferencia de fase entre la onda de polarización y la onda electromagnética.

Iniciamos restringiendo el problema a una dimensión tomando $\frac{\partial}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial x} = 0$; suponiendo propagación a lo largo del eje z, y limitando la discusión a tres ondas planas interactuantes, definidas por:

$$E_1(z, t) = A_1(z) e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)}$$

$$E_2(z, t) = A_2(z) e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)}$$

$$E_2(z, t) = A_2(z) e^{-i(\omega_2 - k_2 z)} \quad (29)$$

Donde los subíndices 1, 2 y 3 se refieren a las frecuencias, existen, por supuesto, las componentes complejas conjugadas; pero aquí se han suprimido sus expresiones para facilitar el desarrollo.

Además de la fase determinada por la constante de propagación k , cada onda tiene una fase que es dependiente de z y se expresa en:

$$A_1(z) = \frac{1}{2} \delta_1(z) e^{i\phi_1(z)}$$

De la ecuación (17) se encuentra:

$$\rho_1(z, t) = 4d A_2^M(z) A_3(z) e^{-i((\omega_3 - \omega_2)t - (k_3 - k_2)z)}$$

$$\rho_2(z, t) = 4d A_1^M(z) A_3(z) e^{-i((\omega_3 - \omega_1)t - (k_3 - k_1)z)}$$

$$\rho_3(z, t) = 4d A_1(z) A_2(z) e^{-i((\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)z)} \quad (30)$$

Donde otra vez se tiene $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$.

Nótese que la fase de la polarización está determinada por la fase de los campos incidentes que la generan.

Utilizando la ecuación (30) y las ecuaciones de onda (2-13), obtenemos las siguientes tres ecuaciones de amplitud acopladas de los campos a ω_1 , ω_2 y ω_3 .

$$\frac{dA_1(z)}{dz} = -i \frac{8\pi\omega_1^2}{k_1 c^2} d A_2^M(z) A_3(z) e^{i(k_3 - k_2 - k_1)z}$$

$$\frac{dA_2(z)}{dz} = -i \frac{8\pi\omega_2^2}{k_2 c^2} d A_1^M(z) A_3(z) e^{i(k_3 - k_2 - k_1)z}$$

$$\frac{dA_3(z)}{dz} = -i \frac{8\pi\omega_3^2}{k_3 c^2} d A_1(z) A_2(z) e^{i(k_3 - k_2 - k_1)z} \quad (31)$$

Se observa que cada ecuación da la razón de cambio con la distancia de la amplitud a una frecuencia como una función de las amplitudes a las otras dos frecuencias y de la diferencia de fase entre la onda de polarización y la onda electromagnética. Escribiéndose esta diferencia como:

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 \quad (32)$$

Claramente cada una de las tres amplitudes depende de las dos

restantes. Por lo tanto, una solución general de estas tres ecuaciones no es nada fácil. No obstante si se supone un proceso de interacción de baja eficiencia, esto es, un proceso en el cual los campos de bombeo sean lo suficientemente débiles para suponer que sus amplitudes no cambian significativamente durante la interacción, entonces las tres ecuaciones se reducen a una ecuación desacoplada que puede integrarse fácilmente.

Tómese, por ejemplo, la interacción $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3$. Puesto que se ha supuesto que A_1 y A_2 son constantes, se puede escribir:

$$A_3 = - \frac{8\pi\omega_3^2}{k_3 c^2} d A_1 A_2 \int_0^L e^{i\Delta k z} dz \quad (33)$$

Donde se integra sobre un cristal de longitud L . La integración puede realizarse fácilmente, obteniéndose:

$$A_3 = - \frac{8\pi \omega_3^2}{k_3 c^2 d} A_1 A_2 \left[\frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k} \right]$$

Puesto que $\omega_3 = 2\pi c/\lambda_3$ y $k_3 = 2\pi n_3/\lambda_3$, se puede también escribir:

$$A_3 = - \frac{16\pi^2}{n_3 \lambda_3 \Delta k} d A_1 A_2 \left[\frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k} \right] \quad (34)$$

El parentesis dentro de la ecuación (34) indica que la onda generada E_3 es el resultado de la interferencia de una onda libre E_3^T (solución homogénea de la ecuación no lineal de amplitud) y una onda impulsada E_3^F (solución inhomogénea de la ecuación no lineal de amplitud).

La potencia por unidad de área en el material con índice n es:

$$S = \frac{cn}{8\pi} E^2 = \frac{cn}{2\pi} A A^* \quad (35)$$

Multiplicando la ecuación (34) por su complejo conjugado y usando la ecuación (35) en ambos lados, se encuentra que la potencia de salida por unidad de área es:

$$S_3 = \frac{512\pi^5 L^2 d^2 S_1 S_2}{n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2 c} \left[\frac{\sin x}{x} \right]^2 \quad (36)$$

O si denotamos $\frac{\sin x}{x}$ por $\text{sinc } x$; a la potencia total por W y al área por A .

$$W_3 = \frac{512\pi^3 L^2 d^2 W_1 W_2}{n_1 n_2 n_3 \lambda^2 c A} \operatorname{sinc}^2 x \quad (37)$$

En ambas ecuaciones (36) y (37) tenemos $x = \frac{\Delta k L}{2}$.

Es importante obtener las dimensiones correctas en estas ecuaciones. Puesto que se ha trabajado en sistema c.g.s., la potencia total W está dada en ergs, d está dada en unidades c.g.s. (Cues/dinas), y todas las longitudes en cm.

Frecuentemente es conveniente dar a las potencias en watts; expresándose las ecuaciones anteriores con dimensiones híbridas.

$$P_3 = \frac{52.2 d^2 L^2 P_1 P_2}{n_1 n_2 n_3 \lambda^2} \left[\operatorname{sinc} x \right]^2 \quad (38)$$

Donde L y d están en centímetros y λ en unidades c.g.s., pero P_1 , P_2 y P_3 están en watts por centímetro cuadrado.

La ecuación (38) muestra algunas características que son típicas del meclado de frecuencia de volumen a baja eficiencia en la conversión.

- 1) Para $\Delta k \neq 0$ la potencia de salida varía como $\operatorname{sinc}^2 x$. Una gráfica de S_3 normalizada como función de la diferencia de fase Δk se ilustra en la figura 2. Nótese que la intensidad S_3 es una función simétrica respecto de $\Delta k=0$ con un máximo a $\Delta k=0$.
- 2) Para $\Delta k=0$ la salida es proporcional al cuadrado de la longitud del cristal.
- 3) La potencia de salida es proporcional al producto de las potencias de entrada.

El punto 2, por supuesto, es verdad sólo en la aproximación de señal pequeña utilizada aquí.

La condición de acoplamiento de fase

$$\Delta k = 0 \quad (39)$$

necesaria para maximizar la intensidad de la onda generada se alcanza cuando la velocidad de fase de la onda de polarización es igual a la velocidad de fase del campo electromagnético E generado. Varias técnicas para lograr esta condición de acoplamiento de fase se verán en el siguiente capítulo.

Para resaltar la importancia de la condición de acoplamiento de fase se presenta en la figura (39) la potencia por unidad de área S_3 como función de la longitud del cristal a diferentes valores fijos de Δk . A acoplamiento de fase perfecta el campo generado se mantiene en una relación de fase (constante) con su polarización impulsora, y la intensidad S_3 crece, como se

mencionó en el punto 2, proporcional al cuadrado de la longitud.

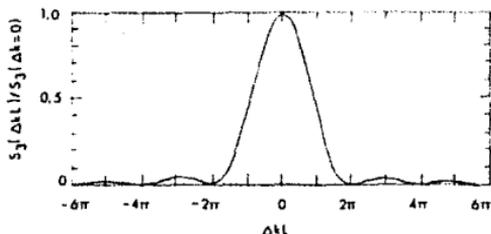


FIG. 2. INTENSIDAD A ω_3 NORMALIZADA COMO UNA FUNCION DE LA DIFERENCIA DE FASE.

A valores distintos de cero de Δk , de cualquier manera, la intensidad S_3 oscila como una función de la longitud.

La intensidad máxima ocurre a valores múltiples impares de la llamada longitud de coherencia L_c , la cual está dada por:

$$L_c = \pi / \Delta k \quad (40)$$

A esta distancia el campo generado ha sufrido un cambio de fase de $\pi/2$ radianes respecto a su polarización impulsora. Si una propagación adicional ocurre, entonces, la polarización no lineal tomará potencia de la onda generada retornándola a los campos de bombeo hasta que otro cambio de fase $\pi/2$ ocurra.

Todo este análisis puede derivarse al considerar la conducta alternante de la absorción de potencia a ω_3 realizada por el cristal:

$$\overline{W_3} = E_3 \cdot \frac{\partial \overline{P}}{\partial t} = \text{Potencia absorbida promedio por unidad de volumen} \\ \text{(la barra horizontal indica el promedio)}$$

El análisis se realizará en forma detallada en el próximo capítulo.

Para un valor general de Δk la radiación de ω_3 neta puede generarse sólo del último par de longitudes de coherencia, o fracción de ella. La longitud de coherencia disminuye con el aumento de Δk , conduciendo a una disminución en la amplitud de

las oscilaciones (ver figura (3)). Por lo tanto, una generación eficiente de un campo electromagnético E_3 requiere que L_c sea mucho mayor que la longitud del cristal, obteniéndose el caso ideal de $L_c \rightarrow \infty$ para $\Delta k = 0$.

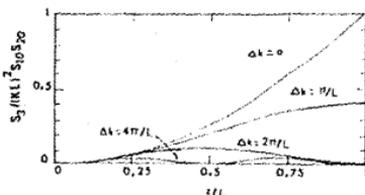


FIG. 3. INTENSIDAD S_3 NORMALIZADA COMO UNA FUNCIÓN DE LA DISTANCIA PARA DIFERENTES VALORES DE Δk .

Puesto que la señal de salida del experimento de mezclado de frecuencia frecuentemente es muy pequeña comparada con las entradas, puede ser muy difícil en ocasiones asegurar si una señal observada es realmente la salida derivada o es sólo una fracción dispersada de la entrada. Aquí el punto 3 proporciona una forma posible de verificación:

Al observarse una disminución de la potencia de la señal generada para una reducción en la potencia de las entradas. Por ejemplo; si ambas entradas se disminuyen en un factor de 2, la salida debe disminuir por un factor de 4.

Una prueba adicional de la naturaleza de la frecuencia de mezclado en una salida observada se proporciona por el factor d en la ecuación (36), la cual da, implícitamente, la intensidad y la dirección de polarización de la salida como una función de las polarizaciones y las direcciones de propagación de las salidas. Este punto se trata en detalle en el capítulo 4.

10. Las relaciones de Manly-Rowe.

Un examen adicional de las tres ecuaciones acopladas (31) muestra que la segunda ecuación puede obtenerse de la primera

intercambiando A_2 y A_1 , pero la tercera ecuación no puede obtenerse por un intercambio similar. El significado de esta afirmación se vuelve muy claro cuando se busca el flujo de potencia. Suponiendo $\Delta k=0$, se encuentra de las ecuaciones (41):

$$\frac{n_1 c}{\omega_1} A_1^* \frac{dA_1}{dz} = -9 \text{mid } A_1^* A_2^* A_3 \quad (41)$$

$$\frac{n_2 c}{\omega_2} A_2^* \frac{dA_2}{dz} = -9 \text{mid } A_2^* A_1^* A_3 \quad (42)$$

$$\frac{n_3 c}{\omega_3} A_3^* \frac{dA_3}{dz} = -9 \text{mid } A_3^* A_2^* A_1 \quad (43)$$

Y puesto que el lado derecho de las ecuaciones (41) y (42) son iguales al conjugado complejo del lado derecho de la ecuación (43) se obtiene:

$$\frac{n_1 c}{\omega_1} \frac{d}{dz} \left(A_1^* A_1 \right) = \frac{n_2 c}{\omega_2} \frac{d}{dz} \left(A_2^* A_2 \right) = - \frac{n_3 c}{\omega_3} \frac{d}{dz} \left(A_3^* A_3 \right) \quad (44)$$

Esta relación, primero formulada por Manley-Rowe, tiene consecuencias de gran alcance. Nótese que ha sido derivada de las ecuaciones de amplitud acopladas sin especificar la interacción particular, así que tal relación es válida para la generación de frecuencia-suma o frecuencia-diferencia. Para la generación de frecuencia-suma (e.g., entre láseres de frecuencias ω_1 y ω_2), la relación de Manley-Rowe afirma que ambos láseres perderán potencia, la cual es ganada por la suma de frecuencias $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. Pero para el mezclado de diferencia de frecuencia $\omega_3 = \omega_2 - \omega_1$, se encuentra de la misma relación que la fuente a ω_3 pierde potencia no solo a la frecuencia generada ω_3 sino también a la de la fuente ω_2 . En otras palabras: si frecuencia diferencia ω_3 se genera usando las dos frecuencias ω_1 y ω_2 como entradas, ambas ω_1 y ω_2 ganan potencia.

Puesto que $\left[AA^* / \omega \right]$ es una medida de la densidad fotónica, se puede decir también que el fotón a ω_3 se divide en un fotón a ω_1 y a un fotón a ω_2 , o, en el caso de mezclado de frecuencia suma, que dos fotones (uno a ω_1 y otro a ω_2) se combinan para dar un fotón a ω_3 . Puesto que la fuente de ω_2 en el mezclado de frecuencia diferencia gana potencia, esto abre la posibilidad de generar frecuencia diferencia entre una fuente de gran intensidad a ω_3 , el bombeo, y una fuente débil a ω_2 . Si la señal débil a ω_2 pasa a través del cristal no lineal una y otra vez, ganará

potencia en cada paso y se amplificara; como consecuencia, la señal a ω_1 también se amplificara. Ahora la señal débil a ω_2 no necesita provenir del exterior, puede obtenerse colocando el material no lineal en una cavidad de espejos que sea resonante a ω_2 . Si la ganancia por paso es mayor que la pérdida por paso, tal sistema oscilará. Obteniéndose un oscilador paramétrico.

11. Generación de segundos armónicos.

Un caso especial de mezclado de frecuencia ocurre cuando ambas frecuencias de entrada son iguales. La frecuencia de la salida es entonces el doble de la frecuencia de las entradas; y la interacción es conocida como una generación de segundos armónicos (abreviado GSA). Para obtener las ecuaciones acopladas para este caso especial no basta con hacer $\omega_1 = \omega_2$ en las ecuaciones (21); ya que esto daría una polarización a 2ω , la cual se excedería por un factor de 2. Esto es debido a que la suma de frecuencias está compuesta de un término $\omega_1 + \omega_2$ y de un término $\omega_2 + \omega_1$; mientras que la GSA tiene solo un término $\omega_1 + \omega_1$ tomado una sola vez. Regresando a la ecuación (16) para la polarización no lineal, y realizando los mismos pasos que antes, se obtiene:

$$\frac{dA_1(z)}{dz} = -i \frac{8\pi\omega_1^2}{k_1^2} d A_1^*(z) A_2(z) e^{-i\Delta k z}$$

$$\frac{dA_2(z)}{dz} = -i \frac{16\pi\omega_1^2}{k_2^2} d A_1^2(z) e^{-i\Delta k z} \quad (45)$$

Donde $\omega_2 = 2\omega_1$ y $\Delta k = 2k_1 - k_2$.

Así se encuentra que la potencia por unidad de área para GSA, en una aproximación de señal pequeña, está dada por:

$$S(2\omega) = \frac{512\pi^5 L^2 d^2 S^2(\omega)}{n(2\omega)n^2(\omega)\lambda^2 c} \left[\frac{\sin x}{x} \right]^2 \quad (46)$$

Definiendo una eficiencia en la conversión de intensidad fundamental a intensidad de GSA como:

$$\eta = \frac{S(2\omega)}{S(\omega)} = \frac{512\pi^5 L^2 d^2 S^2(\omega)}{n(2\omega)n^2(\omega)\lambda^2 c} \left[\text{sinc } x \right]^2 \quad (47)$$

En ambas ecuaciones (46) y (47) λ representa la longitud de la onda fundamental y otra vez $x = \Delta k L / 2$. La frecuencia fundamental es ω .

Las dos ecuaciones de amplitud acoplada (48) pueden resolverse sin hacer la aproximación de señal pequeña. Para esto se supone una interacción con acoplamiento de fase ($\Delta k=0$) y $\xi_2(0) = 0$:

$$\frac{d}{dz} A_1(z) = -i \chi A_1^*(z) A_2(z) \quad (48.a)$$

$$\frac{d}{dz} A_2(z) = -i \chi A_1^2(z) \quad (48.b)$$

con $\chi_1 = \frac{8\pi\omega_1^2}{k_1 c^2}$ $\chi_2 = \frac{16\pi\omega_1^2}{k_2 c^2}$

Si se multiplica la ecuación (48.a) por A_1^* y la ecuación (48.b) por A_2^* se obtiene:

$$\frac{A_1^*(z)}{\chi_1} \frac{d}{dz} A_1(z) = -i A_1^*(z) A_1^*(z) A_2(z) \quad (49.a)$$

$$\frac{A_2^*(z)}{\chi_2} \frac{d}{dz} A_2(z) = -i A_1^*(z) A_1^*(z) A_2^*(z) \quad (49.b)$$

Tomando el complejo conjugado de la ecuación (49.b) y sumándolo a la ecuación (49.a) se encuentra:

$$\frac{d}{dz} \left[\frac{\xi_1^2(z)}{\chi_1} + \frac{\xi_2^2(z)}{\chi_2} \right] = 0 \quad (50)$$

Considerando que $\chi_1 = 2\chi_2$, derivamos de la ecuación (50) la relación de Manley-Rowe de conservación de flujo fotónico para GSA.

$$\frac{\chi_1 c^2}{8\pi\omega_1^2} \xi_1^2(z) + \frac{\chi_2 c^2}{16\pi\omega_1^2} \xi_2^2(z) = \frac{\chi_1 c^2}{8\pi\omega_1^2} \xi_1^2(0) \quad (51)$$

Por otra parte ya que las amplitudes complejas $A_1(z)$ y $A_2(z)$ son iguales a:

$$A_1(z) = \xi_1(z) e^{-i\phi_1(z)}$$

$$A_2(z) = \xi_2(z) e^{-i\phi_2(z)}$$

La ecuación (48.b) se transforma en:

$$\frac{d}{dz} \xi_2(z) = \chi_2 \xi_1^2(z) \left[-i e^{-i(2\phi_1 - \phi_2)} \right] \quad (52)$$

Bajo la suposición de que el campo de segundos armónicos está aumentando se toma $e^{i2\phi_1 - \phi_2} = 1$ (esta suposición implica una diferencia de fase entre la onda armónica y la onda fundamental igual a $\frac{\pi}{2} = 2\phi_1 - \phi_2$; condición que restringe los cristales no lineales a materiales fotorefractivos. La suposición puede evitarse trabajando con las intensidades $|A|^2$ en lugar de las amplitudes A ; la ecuación (52) es, entonces igual a:

$$\frac{d}{dz} \xi_2(z) = \kappa_2 \left[\xi_1^2(z) - \xi_2^2(z) \right] \quad (53)$$

Es decir $\frac{1}{\xi_1^2(z) - \xi_2^2(z)} d\xi_2(z) = \kappa_2 dz$

Realizando la integración encontramos $\xi_2(L)$ igual a:

$$\xi_2(L) = \xi_1(0) \tanh \left[\xi_1(0) \kappa_2 L \right] \quad (54)$$

O expresando el resultado en términos de la intensidad de segundos armónicos:

$$S_2 = S_1(0) \left[\tanh \left[\frac{L}{L_{ag}} \right] \right]^2 \quad (55)$$

$$\text{con } L_{ag} = \left[\frac{4\pi\omega^2 d}{k_1 c^2} \xi_1(0) \right]^{-1} \quad (56)$$

Conocida como longitud de agotamiento.

Utilizando la ecuación (51) y la relación trigonométrica $[\tanh]^2 + [\text{sech}]^2 = 1$ se encuentra la potencia por unidad de área del campo fundamental:

$$S_1 = S_1(0) \left[\text{sech} \left[\frac{L}{L_{ag}} \right] \right]^2 \quad (57)$$

La dependencia de las amplitudes ξ_1 y ξ_2 de la longitud de agotamiento se ilustra en la figura (4). En ella se nota que en $L=L_{ag}$ aproximadamente el 75% de la amplitud ξ_1 se ha convertido en ξ_2 .

La eficiencia en la GSA para este caso de alta conversión será

igual a:

$$\frac{S_2}{S_1 \cos} = \left[\tanh \left(\frac{L}{2g} \right) \right]^2$$

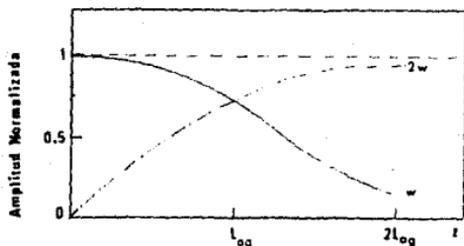


FIG. 4. CRECIMIENTO DE LA AMPLITUD DE GENERACION DE SEGUNDOS ARMONICOS NORMALIZADA Y DISMINUCION DE LA AMPLITUD FUNDAMENTAL NORMALIZADA PARA IGUALACION DE FASE PERFECTA, SI LOS SEGUNDOS ARMONICOS CRECEN DE CERO.

12. Relacion entre d_{ij} y el coeficiente electro-optico lineal r_{ij}

Tratando el efecto electro-óptico lineal como una mezcla de dos ondas con frecuencias ω_1 y cero para crear una tercera onda a ω_1 , como se ha hecho antes; se pueden utilizar las ecuaciones de amplitud acopladas para encontrar la relación entre los coeficientes elect. ópticos normalmente usados r_{ij} y las susceptibilidades no lineales d_{ij} . Tomando $\xi_1 e^{-i(\omega t)}$ como la onda de luz, ξ_2 como el campo aplicado, y $\xi_3 e^{-i(\omega t - \phi)}$ como la onda generada, se encuentra de la última expresión de la ecuación (31):

$$\frac{d\xi_3}{dz} = -i \frac{2\pi\omega^2}{kc^2} d \xi_1 \xi_2$$

y; escribiendo la dependencia de frecuencia, esto da para un cristal de longitud L:

$$\xi_3 e^{-i(\omega t - \phi)} = -i \frac{2\pi\omega^2}{kc^2} L d \xi_1 \xi_2 e^{-i(\omega t)}$$

Y puesto que $-i = e^{-i\pi/2}$, esto puede escribirse como:

$$\xi_3 e^{-i(\omega t - \phi)} = \frac{4\pi^2 L}{n\lambda} d \xi_1 \xi_2 e^{-i(\omega t + (\pi - 2))}$$

En otras palabras, hemos generado una pequeña amplitud ξ_3 la cual está adelantada en fase 90° . Ahora; usando el coeficiente electro-óptico lineal, se encuentra que un campo aplicada ξ_2 produce un cambio en el índice de refracción. Estando definido el efecto electro-óptico por la relación:

$$\Delta \left(\frac{1}{n^2} \right) = r \xi_2$$

Así que:

$$\Delta n = - \frac{n^3 r \xi_2}{2}$$

En un cristal de longitud L ; esta diferencia de índice producirá un cambio de fase $\Delta\phi = \Delta n kL = -\pi n^3 r \xi_2 L / \lambda$, el cual debe ser el mismo que el producido por el efecto de ξ_1 de una pequeña componente ξ_3 , 90° fuera de fase: Puesto que $\xi_3 \ll \xi_1$; es posible escribir para este último cambio de fase:

$$\Delta\phi = \tan^{-1} \frac{\|\xi_3\|}{\|\xi_1\|} \approx \frac{\|\xi_3\|}{\|\xi_1\|}$$

Y así tenemos:

$$-\frac{\pi n^3 r \xi_2 L}{\lambda} = \frac{4\pi^2 L d \xi_2}{n\lambda}$$

Es decir $r = -\frac{4\pi}{n^4} d$

De la ecuación (18) encontramos por contracción de los índices apropiados, que la matriz electro-óptica puede determinarse de la matriz de susceptibilidad no lineal intercambiando los renglones y las columnas. Así podemos escribir:

$$r_{ij} = -\frac{4\pi}{n^4} d_{ji} \quad (58)$$

13. Ondas de luz en la frontera de un medio no lineal.

Habiéndose tratado en las secciones anteriores las propiedades no lineales de segundo orden en el volumen de un material, estudiaremos ahora los efectos frontera que ocurren en un cristal no lineal.

Bajo la consideración de que los efectos a estudiar son generalizaciones para ondas armónicas de los fenómenos que sufren las ondas fundamentales en la frontera de un medio lineal (por ejemplo: ley de la reflexión, ley de Snell, ecuaciones de Fresnel, etc.); limitaremos el análisis a un medio no lineal isotrópico, esto evitará las complicaciones que acarrearía el tratar con medios anisotrópicos, permitiéndonos llegar a resultados válidos para ambos tipos de medios no lineales.

Considérese que una onda plana monocromática $\vec{E} = \vec{A}_1 e^{-i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})}$ incide sobre la frontera plana que separa un medio lineal (aire) y un medio no lineal (cristal isotrópico). Esta onda incidente producirá dos ondas armónicas planas: Una onda reflejada de segundos armónicos.

$$\vec{E}_2^R = \vec{A}_2^R e^{-i(2\omega_1 t - \vec{k}_2^R \cdot \vec{r})} \quad (59)$$

Con $\vec{k}_2^R = \left(\frac{2\omega}{c}\right) \hat{s}_R$, donde \hat{s}_R es un vector unitario en la dirección de propagación de la onda reflejada.

Y una onda transmitida de segundos armónicos.

$$\vec{E}_2 = \vec{E}_2^T + \vec{E}_2^F \quad (60)$$

Expresada como la superposición de una onda libre \vec{E}_2^T y una onda forzada (o impulsada) \vec{E}_2^F con:

$$\vec{E}_2^T = \vec{A}_2^T e^{-i(2\omega_1 t - \vec{k}_2^T \cdot \vec{r})} \quad (61)$$

$$\vec{E}_2^F = \vec{A}_2^F e^{-i(2\omega_1 t - \vec{k}_2^F \cdot \vec{r})} \quad (62)$$

Siendo $\vec{k}_2^T = (2\omega/c)n_T \hat{s}_T$ y $\vec{k}_2^F = (2\omega/c)n_F \hat{s}_F$ donde \hat{s}_T y \hat{s}_F representan vectores unitarios en las direcciones de las ondas transmitidas fuente (libre) o impulsada respectivamente.

La amplitud A_2^F será proporcional a la amplitud de $\mathcal{P}(2\omega)$, tal que:

$$\mathcal{P}(2\omega) = P e^{-i(2\omega_1 t - \vec{k}_2^F \cdot \vec{r})} \quad (63)$$

con $\vec{k}_2^F = 2\vec{k}_1$.

Las ondas planas armónicas reflejada, fuente y transmitida

deben acoplarse en la frontera plana (especificada por un vector unitario normal \hat{N}) debiendo todas tener la misma componente tangencial del vector de onda. Esta condición da la forma vectorial de la ley de Snell para ondas armónicas.

$$\vec{k}_2^R \times \hat{N} = \vec{k}_2^T \times \hat{N} = \vec{k}_2^F \times \hat{N} \quad (64)$$

Es decir:

$$\hat{s}_R \times \hat{N} = n_T \hat{s}_T \times \hat{N} = n_F \hat{s}_F \times \hat{N} \quad (\text{en la frontera})$$

De estas ecuaciones se infiere que los tres vectores de onda \vec{k}_2^R , \vec{k}_2^T y \vec{k}_2^F se encuentran en un mismo plano (plano de incidencia).

Por otro lado; los campos armónicos deben satisfacer las condiciones frontera; en las cuales se requiere que las componentes tangenciales de \vec{E} y de $\vec{H} = i(c/\omega)\nabla \times \vec{E}$ sean continuas en la frontera.

Puesto que el cristal no lineal considerado es isotrópico, lo que asegura una sola onda libre E_2^T y un solo índice $n_T(2\omega)$, las condiciones frontera pueden expresarse en forma completamente análoga a las relaciones familiares de Fresnel para la reflexión y la refracción; bajo la salvedad de que el papel de la onda incidente ha sido tomado aquí por la onda impulsada.

Una vez definidas en la figura (5) las componentes paralelas y perpendiculares al plano de incidencia junto con sus ángulos, se pueden expresar las ecuaciones de Fresnel para generación armónica como:

$$\begin{aligned} A_{\perp}^T &= -A_{\perp}^F (n_F \cos \theta_F + \cos \theta_R) / (\cos \theta_R + n_T \cos \theta_T) \\ A_{\parallel}^T &= - \left[A_{\parallel}^F (\cos \theta_F + n_F \cos \theta_R) + A_{\perp}^F \text{sen} \theta_F \right] / (n_T \cos \theta_R + \cos \theta_T) \\ A_{\perp}^R &= A_{\perp}^F (n_T \cos \theta_T - n_F \cos \theta_F) / (\cos \theta_R + n_T \cos \theta_T) \\ A_{\parallel}^R &= \left[A_{\parallel}^F (n_F \cos \theta_T - n_T \cos \theta_F) - A_{\perp}^F \text{sen} \theta_F \right] / (n_T \cos \theta_R + \cos \theta_T) \end{aligned} \quad (65)$$

Y la ley de Snell es:

$$n_F \text{sen} \theta_F = n_T \text{sen} \theta_T = \text{sen} \theta_R \quad (66)$$

La onda forzada en un medio isotrópico es:

$$A_{\perp}^F \cdot_{\parallel} = 4\pi \left(n_F^2 - n_T^2 \right)^{-1} P_{\perp \cdot \parallel} \quad (67, 68)$$

$$A_{\perp}^F = -4\pi n_T^{-2} P_{\perp} \quad (69)$$

Bloembergen y Pershan (1962) han discutido estas soluciones con gran detalle (Ref. 16). Las ecuaciones son formalmente

válidas para un medio absorbente si se usan ángulos complejos. Si la onda forzada es producida por un solo rayo láser (como en GSA pero no en mezclado) el índice efectivo n_f es igual al índice del rayo láser incidente $n(\omega_i)$. El rayo láser se muestra en la figura (5) incidiendo a un ángulo θ_i , y se sigue de la ley de Snell que la reflexión armónica es especular, $\theta_R = \theta_i$, inferida a partir de $\vec{k}_2^F = 2\vec{k}_1^T$ y de la ley de Snell para ondas fundamentales con \vec{k}_1^T el vector de onda de la onda fundamental transmitida en el cristal.

Las ondas reflejadas pueden ser escritas en la forma:

$$A_{\perp}^R = -4\pi P_{\perp} \frac{\text{sen}\theta_F \text{sen}^2\theta_T}{\text{sen}\theta_R \text{sen}(\theta_F + \theta_T) \text{sen}(\theta_R + \theta_T)}$$

$$A_{\parallel}^R = 4\pi P_{\parallel} \frac{\text{sen}\theta_F \text{sen}^2\theta_T \text{sen}(\theta_F + \theta_T + \alpha)}{\text{sen}\theta_R \text{sen}(\theta_F + \theta_T) \text{sen}(\theta_F + \theta_T) \text{sen}(\theta_R + \theta_T) \cos(\theta_R - \theta_T)}$$

(70)

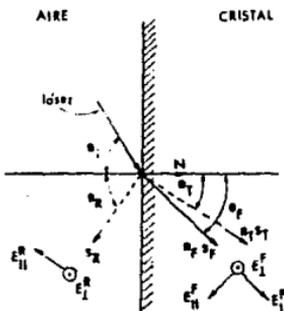


FIG. 5. DEFINICIONES DE LOS ANGULOS Y DE LAS COMPONENTES EN LAS ECUACIONES DE FRESNEL.

Donde P_{\parallel} y α están definidos por $P_{\parallel} \equiv P_0 \text{sen}\alpha$, $P_{\perp} \equiv P_0 \text{cos}\alpha$.

Aunque por simplicidad se supuso un medio isotrópico, la solución es válida también para un cristal uniaxial con eje óptico en el plano de incidencia. En este caso E_{\parallel} y E_{\perp} son las

ondas ordinarias y extraordinarias respectivamente. En este caso debe tenerse el cuidado de utilizar índices de refracción apropiados en las ecuaciones (65) y (66).

Se ha supuesto en (65) que \vec{E}^T es transversal a \hat{s}_T , lo cual no es estrictamente correcto para la onda extraordinaria; pero el error debido a esta suposición es usualmente despreciable.

La dependencia angular de la amplitud reflejada en la Ec. (70) predice para un ángulo de Brewster:

$$A_{\parallel}^R = 0; \text{ si } \theta_F + \theta_T + \alpha = \pi$$

Esto ha sido verificado experimentalmente en un cristal isotrópico de GaAs por Chang y Bloembergen (1986). Por otra parte, Bloembergen y Lee (1987) han verificado también la existencia de un ángulo de reflexión total a partir del cual la radiación armónica reflejada, generada por un rayo láser incidendo desde un medio no lineal más denso, llega a ser mayor.

Bajo ciertas condiciones la onda impulsada E^F y la onda libre E^T pueden ser físicamente separadas. Cuando el medio es transparente para el rayo láser y fuertemente absorbente a la frecuencia armónica, las ondas libres son generadas en la superficie incidente; pero son absorbidas en el medio. La onda impulsada está presente y produce generación armónica no importando la anchura del cristal. Giordmaine y Kentzepis (1967) han observado ambas ondas usando una muestra con caras no paralelas (cuña). Con ambas ondas normales a la superficie de incidencia ellas se refractarán a través de ángulos diferentes en la superficie de salida, bajo la condición $n_F^2 \neq n_T^2$ (Ref. B capítulo E4).

14. Dimensiones.

Excepto donde sea específicamente indicado; el sistema c.g.s. es usado en este trabajo. La dimensión de los coeficientes no lineales en este sistema es centímetros por statvolt (o es sobre dinas). En unidades MKS esta llega a ser metros por volt.

La conversión de c.g.s. a unidades MKS esta dada por:

$$d(\text{MKS}) = \frac{4}{3 \times 10^4} (\text{ues})$$

En el sistema MKS la polarización no lineal esta dada por:

$$P = \epsilon d EE$$

Donde ϵ_0 es la permitividad del espacio libre.

Algunos autores incluyen ϵ_0 en el coeficiente. Entonces la conversión de unidades electrostaticas a unidades MKS llega a ser $d(\text{MKS}) = 3.68 \times 10^{-13} d(\text{ues})$.

Capítulo 4. FACTORES QUE INTERVIENEN EN LA GENERACION EFICIENTE DE
PROCESOS NO LINEALES.

Contenido.

1. Introducción.....	87
2. Acoplamiento de fase.....	88
2.1. Flujo de potencia en el caso de no acoplamiento de fase.....	88
2.2. Métodos de cuasi-acoplamiento de fase.....	90
2.3. Acoplamiento de fase variando la orientación del cristal.....	92
2.4. La expresión de d_{eff} para diferentes clases de cristales.....	94
2.5. Desventajas de la acoplamiento de fase por orientación.....	97
2.6. Acoplamiento de fase dependiente de la temperatura.....	99
2.7. Otros métodos de acoplamiento de fase.....	100
3. Dimensión finita del rayo.....	101
4. Efectos de la estructura modal en GSA.....	104
5. GSA de un láser modo cerrado (mode-locked).....	108
6. Materiales no lineales.....	108

1. Introducción.

Al estudiar las intensidades generadas en interacciones de tres ondas se encuentra que son tres los factores para una generación eficiente de este tipo de procesos no lineales:

- 1) El término $\left(\frac{\sin x}{x}\right)^2$.
- 2) La intensidad de la onda incidente.
- 3) Las características del cristal no lineal.

El término $\left(\frac{\sin x}{x}\right)^2$, como se mencionó antes, es una medida de la diferencia de fase de la polarización y la onda electromagnética generada, y debido a la natural dispersión del color esta diferencia es usualmente grande. Para obtener una cantidad significativa de potencia es obviamente necesario lograr la condición de acoplamiento de fase.

El acoplamiento de fase se alcanza en cristales birrefringentes variando los índices de refracción del material hasta obtener la igualdad de las velocidades de fase de las ondas de polarización y de campo generado. Con este fin; se controlan los índices de refracción mediante temperatura, aplicación de campos eléctricos, aplicación de presión o variación de la orientación del cristal.

En cristales isotrópicos existen otros medios para lograr el acoplamiento de fase, como son: la alternación de placas cristalinas con ejes ópticos invertidos; cambios de fase por reflexión en guías de ondas; o uso de propiedades magneto-ópticas.

Aun cuando la condición de acoplamiento de fase sea satisfecha, se requiere todavía grandes intensidades de luz incidente para obtener conversiones eficientes (más de 10%). Estas intensidades son posibles de alcanzar utilizando rayos láser enfocados. El empleo de estos rayos modifica las suposiciones idealizadas hechas al derivar las intensidades generadas en interacciones de tres ondas; en cuanto a que:

- 1) La onda fundamental era monocromática, pudiendo describirse mediante un campo de la forma $E(\omega) \cos(\omega t + k \cdot R)$.
- 2) La onda incidente era de extensión infinita perpendicular a la dirección de propagación.

Es necesario, por lo tanto, tomar en cuenta los cambios producidos en las intensidades generadas al utilizar rayos láser incidentes de dimensión finita, enfocados y con múltiple frecuencias (modos) de radiación.

Todo lo anterior limita el uso de cristales no lineales a aquellos con propiedades adecuadas para satisfacer el acoplamiento de fase, y con una resistencia suficiente al daño óptico inducido por radiación óptica intensa.

La generación eficiente de procesos no lineales necesita además que el cristal posea la susceptibilidad no lineal suficiente para producir el efecto deseado y una transparencia óptica a las frecuencias incidentes y generadas.

En este capítulo se estudiarán los métodos para alcanzar el acoplamiento de fase en cristales no lineales y los efectos producidos en las intensidades generadas al utilizar rayos láser enfocados, finalizando con una breve descripción de las principales características de los cristales empleados en la generación eficiente de los procesos no lineales.

2. Acoplamiento de fase.

2.1. Flujo de potencia en el caso de no acoplamiento de fase.

Hemos visto del capítulo anterior (sección 9, figura 3) como la intensidad no lineal generada es proporcional a $L^2(\text{sen}\Delta kL/2)^2$ ($\Delta kL/2$) oscilaba como sen^2 cuando el valor de L cambiaba, alcanzando su primer máximo a una longitud del cristal igual a la llamada longitud de coherencia L_c .

Al observar la figura (3-3) en el caso donde el cristal no tiene acoplamiento de fase, se nota que la máxima señal generada corresponde a una longitud de coherencia, sin importar que tan grande sea el cristal.

Si, por otro lado, $\Delta k=0$, la señal será proporcional al cuadrado de la longitud del cristal, al menos en una aproximación de señal pequeña. En otras palabras si el cristal tiene acoplamiento de fase la potencia generada será grande, si no; sólo muy poca potencia se obtiene.

La pregunta ahora es, ¿qué le sucede a la potencia usada para generar aquellas componentes de frecuencia de la polarización no lineal para la cual el cristal no tiene acoplamiento de fase?

La pregunta es importante, puesto que estas frecuencias componentes están siempre presentes. Luego si esta potencia se perdiera (e.g., por absorción), alguna generación no lineal también desaparecerá.

La respuesta a esta pregunta se encuentra en la fase de la señal. Partiendo del teorema de Poynting, el cual expresa el flujo de potencia dentro de una unidad de volumen como:

$$-\frac{c}{4\pi} \nabla \cdot (\vec{E} \times \vec{H}) = \frac{1}{4\pi} \left\{ \epsilon \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial t} + \epsilon' \frac{\partial \mathcal{E}'}{\partial t} \right\} + \epsilon \frac{\partial \mathcal{P}}{\partial t} \quad (1)$$

En donde se ha despreciado el carácter tensorial de ϵ ; y las letras cursivas específicamente indican el uso de cantidades reales.

El término entre paréntesis en el lado derecho de la ecuación (1) es la razón de aumento de la energía electromagnética en el vacío; y el último término es la potencia gastada al variar la

polarización eléctrica.

Por unidad de volumen, la potencia de entrada en la polarización es:

$$W_{vol} = \overline{\delta \cdot \frac{\partial P}{\partial t}}$$

Donde la barra horizontal indica un promedio sobre un periodo largo comparado con $2\pi/\omega$. Por lo tanto, la absorción de una potencia promedio es:

$$W_{vol} = \frac{1}{2} \omega N \delta \sin \phi \quad (2)$$

Donde ϕ es la diferencia de fase entre la onda de polarización y la onda electromagnética.

Como se vió en la sección 12 del capítulo anterior, para $\Delta k=0$ la señal generada está 90° fuera de fase con la onda de polarización. Esto significa que W_{vol} es negativa (i.e., la potencia es acoplada de la onda de polarización a la onda electromagnética). Para $\Delta k \neq 0$, de cualquier manera, este retraso de fase de 90° existe sólo a $L=0$; y después de una longitud de coherencia la fase de la señal ha cambiado exactamente 90° . Como resultado, el flujo de potencia cambia de signo; y en lugar de acoplar potencia de la onda de polarización a la onda electromagnética, ahora se acopla de la onda electromagnética a la onda de polarización. En otras palabras la potencia se acopla ahora a las ondas incidentes.

Así encontramos que, si la interacción no tiene acoplamiento de fase, la potencia es lanzada de las ondas generadas a las ondas de bombeo, y viceversa.

En generación de segundos armónicos, por ejemplo, la entrada a ω_1 generará una onda a $2\omega_1$ en la primera longitud de coherencia; pero en la segunda longitud de coherencia la onda a $2\omega_1$ producirá una diferencia de frecuencia con la onda a ω_1 , para dar una onda a $2\omega_1 - \omega_1 = \omega_1$. Esto significa que si el cristal tiene exactamente dos longitudes de coherencia de largo, no se producirá generación de segundos armónicos; ni tampoco existirá pérdida de la onda fundamental.

Así en general, si sólo una frecuencia tiene acoplamiento de fase, toda la potencia pérdida por la onda fundamental se acopla a esta frecuencia, y ninguna potencia es gastada en las componentes sin acoplamiento de fase.

La variación de la señal de segundos armónicos con la longitud del cristal fue mostrada primero por Terhune y sus colaboradores, quienes variaron la anchura de un cristal de cuarzo rotándolo. Estos resultados se muestran en la figura (1). La distancia entre máximos sucesivos corresponde a $14 \mu\text{m.}$, siendo el valor de dos longitudes de coherencia, calculado de datos de índices de refracción, igual a $13.9 \mu\text{m.}$

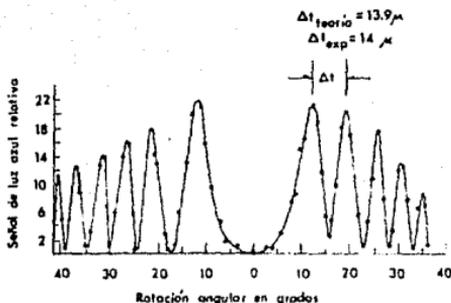


FIG 1. VARIACION DE LA SEÑAL DE SALIDA CUANDO EL CRISTAL SE ROTA. UNA FIGURA SIMILAR RESULTA COMO UNA FUNCION DE LA TEMPERATURA (REF. MAKER ET AL. PHYS. REV. LETT. 8. 21 (1962)).

2.2. Metodos de cuasi-acoplamiento de fase.

Si es posible cambiar la diferencia de fase entre la onda de polarización y la onda electromagnética por $\pi/2$ cada vez que la longitud del cristal aumenta en una longitud de coherencia, se podría obtener una cuasi-condición de acoplamiento de fase. Sería cuasi-acoplamiento de fase ya que la señal a una longitud de coherencia del cristal con acoplamiento de fase es $\pi/4$ mayor que la señal a la misma longitud del cristal sin acoplamiento de fase; al ser $\left(\frac{\sin x}{x}\right)^2 = 4/\pi^2$ para $x = \pi/2$.

Aun así, la señal de este cristal hipotético no sería tan grande como la señal de un cristal con acoplamiento de fase de la misma longitud.

Una manera de alcanzar el cuasi-acoplamiento fue sugerida por Bloembergen et al (Ref.7). Consiste en hacer placas delgadas del cristal, con una anchura de una longitud de coherencia, y colocar las placas cristalinas con sus ejes invertidos alternadamente; lo

que producirá un cambio de signo en la susceptibilidad χ de una placa a la siguiente, y por consecuencia, un cambio de fase de 180° en la onda de polarización que permitirá el casi-acoplamiento de fase con la onda electromagnética.

Los problemas experimentales de la aproximación son obvios; para el cuarzo, por ejemplo, todas las placas deberían tener exactamente $7 \mu\text{m}$ de anchura, y estar en contacto óptico.

Bloembergen y Sievers propusieron para vencer estos inconvenientes crecer capas semiconductoras epitaxialmente una sobre otra. Este tipo de crecimiento artificial mostró propiedades interesantes que no ocurren en la forma volumétrica de los constituyentes separados.

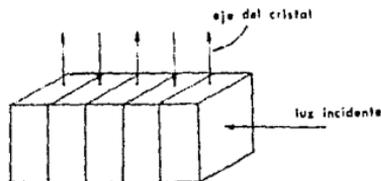


FIG. 2. CUASI-ACOPAMIENTO DE FASE EN UNA PILA DE PLACAS INVERTIDAS UNAS CON RESPECTO A LAS OTRAS.

A continuación se presenta la intensidad obtenida a ω_3 para laminillas formando una anchura total L .

$$S(\omega_3) = \left[\frac{4}{\pi} \right] \left[\frac{1}{2m+1} \right]^2 S(\omega_3) \Big|_{\Delta k=0}$$

Donde $S(\omega_3) \Big|_{\Delta k=0}$ representa la intensidad que se obtendría de un cristal con acoplamiento de fase cuya anchura es igual a la anchura total L de las laminillas.

$S(\omega_3)$ suele representar el 40% de $S(\omega_3) \Big|_{\Delta k=0}$ en generación infrarroja lejana (Ref. 75 p. 37).

Otro método para corregir la diferencia de fase periódicamente fue también sugerido por Bloembergen y sus colaboradores (Ref. 7), experimentalmente verificado por Ashkin et al y Boyd y Patel. El método usa el cambio de fase en la reflexión interna total. Ambas, la onda fundamental y la onda de segundos armónicos se reflejan entre la superficie superior e inferior de una placa de

crystal. El ángulo de reflexión se escoge para que la diferencia de fase acumulada en cada paso entre los dos lados reflejantes se cancele con el cambio de fase diferencial producido por las reflexiones de las ondas fundamental y armónica. Este método ha sido utilizado exitosamente en guías de ondas de GaAs para generación de radiación infrarroja lejana con fuentes láser de dióxido de carbono (Ref. 7 p. 38).

La ventaja de todos estos métodos de cuasi-acoplamiento de fase sobre los métodos descritos en la siguiente sección es que ellos pueden aplicarse a materiales isotrópicos (es importante recordar que existen cristales isotrópicos no centrosimétricos, tales como los cristales cúbicos pertenecientes a las clases 23 y 43; ver apéndice 2).

2.3. Acoplamiento de fase variando la orientación del cristal.

Un método para obtener verdadero acoplamiento de fase (es decir, hacer $\Delta k=0$) fue publicado por Terhune y coautores, e independientemente, por Giordmaine en 1962. El proceso emplea la birrefringencia de un cristal uniaxial.

Para explicar como funciona este método, tomemos un cristal KDP como un ejemplo. Los índices de refracción del cristal KDP se muestran en la figura (3).

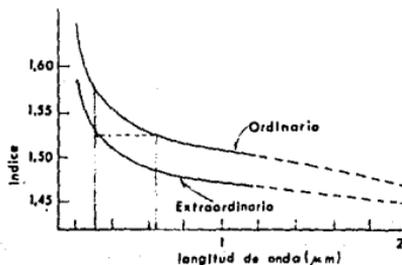


FIG. 3. DISPERSION EN KDP; ILUSTRANDO EL ACOPLAMIENTO DE FASE. EL INDICE ORDINARIO A 3164 Å ES MAYOR QUE EL INDICE EXTRAORDINARIO A 3164 Å, HACIENDO POSIBLE EL ACOPLAMIENTO DE FASE PARA GENERACION DE SEGUNDOS ARMONICOS CON 3164 Å COMO LA LONGITUD DE ONDA FUNDAMENTAL.

El cristal es uniaxial negativo, así que el índice ordinario no es mayor que el índice extraordinario n_e . Para obtener acoplamiento de fase colineal para generación de segundos armónicos es necesario que:

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

O usando $k = \omega c^{-1} n$, la condición de acoplamiento de fase queda expresada en términos de índices como:

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

Supongamos que un láser de He-Ne a 6328 Å se usa como fuente de la figura (3), se observa que el índice ordinario $n_o(\omega)$ a 6328 Å es mayor que el índice extraordinario $n_e(2\omega)$ a 3164 Å. De cualquier manera, como se ha visto de la sección (2-7.3) el índice del rayo extraordinario $n_e(2\omega)$ puede variar cambiando el ángulo entre la normal a la onda y el eje óptico. Por lo tanto, debe ser posible transmitir las ondas fundamental y armónica generada a un ángulo θ_m respecto al eje óptico; tal que el índice $n_o(\omega)$ para la onda fundamental, polarizada como un rayo-o, sea exactamente igual al índice de refracción $n_e(2\omega)$ para el segundo armónico polarizado como un rayo-e; es decir:

$$n_{2\omega}^e(\theta_m) = n_{\omega}^o \quad (3.a)$$

La ecuación (3.a) representa la condición de acoplamiento de fase; llamada también, condición de acoplamiento de índices. Obviamente esto puede realizarse para todas aquellas longitudes de onda λ para las cuales el índice ordinario es mayor que el índice extraordinario a $\lambda/2$. El ángulo θ_m de acoplamiento de índice puede obtenerse de la ecuación (3.a), sustituyendo en ella la expresión (2-48) de $n_{2\omega}^e(\theta)$ resultando:

$$\sin^2 \theta_m = \frac{(n_o^o)^{-2} - (n_{2\omega}^o)^{-2}}{(n_{2\omega}^e)^{-2} - (n_{2\omega}^o)^{-2}} \quad (4)$$

En este ejemplo se han utilizado rayos ordinarios como fundamentales y un rayo extraordinario como el segundo armónico. Para cristales uniaxiales positivos este procedimiento se invierte; las ondas fundamentales serán extraordinarias y el segundo armónico ordinario, expresándose la condición de acoplamiento de fase como:

$$n_{2\omega}^o = n_{\omega}^e(\theta_m) \quad (3.b)$$

Se podría aun mezclar la polarización de los dos rayos

incidentes y tener un rayo ordinario y un rayo extraordinario como fundamentales; produciendo un segundo armónico ordinario en cristales positivos y un segundo armónico extraordinario en un cristal negativo. Si ambas ondas fundamentales tienen la misma polarización, hablamos de acoplamiento de fase tipo I; y si sus polarizaciones son ortogonales el acoplamiento de fase es llamado tipo II.

A continuación se definen las condiciones de acoplamiento de fase tipo II para GSA en un cristal uniaxial (positivo y negativo, respectivamente).

$$n_{2\omega}^* (\theta) = \frac{1}{2} \left[n_{\omega}^* (\theta) + n_{\omega}^{\circ} \right] \quad (\text{negativo})$$

$$n_{2\omega}^{\circ} = \frac{1}{2} \left[n_{\omega}^{\circ} + n_{\omega}^* (\theta) \right] \quad (\text{positivo})$$

Debe aclararse que aunque se utilizó la generación de segundos armónicos en el ejemplo, estos métodos de acoplamiento de fase funcionan igualmente bien si las dos ondas fundamentales no tienen la misma frecuencia.

2.4. La expresión de d_{eff} para diferentes clases de cristales.

Se ha supuesto la posibilidad de obtener segundos armónicos a la polarización deseada dando las polarizaciones de las ondas fundamentales. El que lo anterior pueda realizarse depende de la simetría particular del cristal, y como se verá, para algunas clases de cristales esto es imposible.

Examinemos ahora las diferentes clases de cristales que carecen de centro de simetría para ver a cuales se les permite el acoplamiento de fase de esta forma.

De manera general se tiene:

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 \quad (5)$$

y colocando $k_3 = 0$ en la ecuación (3-32) se encuentra:

$$k_1 + k_2 = k_3 \quad (6)$$

Si se resuelven las ecuaciones (3-31) manteniendo todas las componentes espaciales, se encuentra en el caso más general que:

$$\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 \quad (7)$$

La ecuación (5) representa la conservación de la energía, y la ecuación (7) la conservación del momento.

Puesto que estamos interesados primariamente en el caso donde las tres ondas son colineales, utilicemos la ecuación (6) para derivar:

$$n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 = n_3 \omega_3$$

Podemos encontrar las componentes a lo largo del eje x, y, z de una onda ordinaria propagándose a un ángulo θ respecto al eje z en un plano que forma un ángulo ϕ con el eje x multiplicando la amplitud de la onda por los cosenos directores apropiados.

$$E_o = \|\vec{E}^o\| \begin{pmatrix} \sin\phi \\ -\cos\phi \\ 0 \end{pmatrix} = \|\vec{E}^o\| \cdot \hat{a}_i$$

Para una onda extraordinaria esto llega a ser:

$$E_e = \|\vec{E}^e\| \begin{pmatrix} -\cos\phi \cos\theta \\ -\sin\phi \cos\theta \\ \sin\theta \end{pmatrix} = \|\vec{E}^e\| \cdot \hat{b}_j$$

Si usamos estas componentes para construir el vector \vec{F} de la ecuación (3-20) y utilizamos este vector en la ecuación (3-21), encontraremos las componentes \vec{P} de un vector de polarización \vec{P} . De estas componentes, a su vez, obtendremos la polarización efectiva vista por una onda ordinaria o extraordinaria en la dirección (ϕ, θ) , mediante la realización de las siguientes sumas.

$$P_{\text{eff}}^o = a_i P_i$$

$$P_{\text{eff}}^e = b_j P_j$$

Así para acoplamiento de fase tipo I en un cristal uniaxial negativo, usando la notación no contraída, encontramos:

$$\|\vec{P}^e\| = \left(2 - \delta_{jk}\right) b_{i,jk} a_i a_k \|\vec{E}^e\|^2 \quad (8)$$

Para los otros casos se tiene:

$$\|\vec{P}^e\| = \left(2 - \delta_{jk}\right) a_{i,jk} b_i b_k \|\vec{E}^e\|^2 \quad \text{positivo, tipo I} \quad (9)$$

$$\|\vec{P}^o\| = \left(2 - \delta_{jk}\right) b_{i,jk} b_i b_k \|\vec{E}^o\| \|\vec{E}^e\| \quad \text{negativo, tipo II} \quad (10)$$

$$\|\vec{P}^o\| = \left(2 - \delta_{jk}\right) a_{i,jk} a_i a_k \|\vec{E}^o\| \|\vec{E}^e\| \quad \text{positivo, tipo II} \quad (11)$$

Se pueden derivar expresiones de d_{eff} para los cuatro casos mostrados en las ecuaciones (8) a (11) en cualquiera de las 13 clases de cristales uniaxiales que carecen de centro de simetría, bajo la suposición de falta de simetría de Kleinman.

Por otro lado, siempre que las tres frecuencias caigan en una región sin absorción, la condición de simetría será válida y no existirá diferencia en cual de las tres ondas es la generada. Esto es; si la condición de Kleinman se toma en cuenta, se encontrará una expresión para una interacción entre dos rayos-o y un rayo-e, y otra expresión para una interacción entre dos

rayos-e y un rayo-o. Las expresiones para d_{eff} en las cuales la condición de Kleinman es válida se resumen en la siguiente tabla.

Al estudiar la tabla (1) es posible derivar resultados importantes. De ella se observa que las expresiones de d_{eff} para algunas clases de cristales pueden obtenerse de las expresiones de otras clases de cristales. Por ejemplo, la clase $\bar{6}$ combinada con la clase $\bar{6}$ da la clase 3 , y la clase $\bar{6}m\bar{2}$ más la clase $6mm$ da la clase $3m$.

Otro punto interesante es que para alguna clase de cristales el ángulo con respecto a los ejes x y y es importante, pero en otras clases no entra en la expresión para d_{eff} .

TABLA 1. ECUACIONES PARA d_{eff} EN LOS CASOS DONDE SEA VALIDA LA SIMETRÍA DE KLEINMAN.

Clase de cristal	Dos rayos-e y un rayo-o	Dos rayos-o y un rayo-e
d y 4	0	$d_{15} \text{sen}\theta$
622 y 422	0	0
$6mm$ y $4mm$	0	$d_{15} \text{sen}\theta$
$\bar{6}m\bar{2}$	$d_{22} \cos^2\theta \cos 2\phi$	$-d_{22} \cos\theta \text{sen} 2\phi$
$3m$	$d_{22} \cos^2\theta \cos 2\phi$	$d_{15} \text{sen}\theta -$ $d_{22} \cos\theta \text{sen} 2\phi$
$\bar{6}$	$\cos^2\theta (d_{14} \text{sen} 2\theta - d_{22} \cos 2\phi)$	$\cos\theta (d_{14} \cos\phi -$ $d_{22} \text{sen} 2\phi)$
3	$\cos^2\theta (d_{14} \text{sen} 2\phi + d_{22} \cos 2\phi)$	$\cos\theta (d_{14} \cos\phi -$ $d_{22} \text{sen} 2\phi) +$ $d_{15} \text{sen}\theta$
32	$d_{11} \cos^2\theta \text{sen} 2\phi$	$d_{11} \cos\theta \cos 2\phi$
$\bar{4}$	$\text{sen} 2\theta (d_{14} \cos 2\phi - d_{15} \text{sen} 2\phi)$	$-\text{sen}\theta (d_{14} \text{sen} 2\phi +$ $d_{15} \cos 2\phi)$
$\bar{4}2m$	$d_{14} (\text{sen} 2\theta \cos 2\phi)$	$-d_{14} \text{sen}\theta \text{sen} 2\phi$

Incluso en cierta clase de cristales sólo una parte de la

expresión depende del ángulo ϕ . En la clase 3m, por ejemplo, para el caso de mezclado entre dos rayos-o y un rayo-e se encuentra que el término conteniendo d_{22} se anula cuando 3ϕ es igual a cero. En otras palabras, si el acoplamiento de fase se realiza en el plano xz ($\phi=0$), entonces sólo el término d_{15} se mide. Esta propiedad puede ser usada para medir el signo de los dos coeficientes d_{15} y d_{22} .

En el niobato de litio (LiNbO_3), por ejemplo, la generación de segundos armónicos en un cristal cortado a un ángulo para el cual $\text{sen}3\phi$ tiene un valor negativo, dió una señal más pequeña que en la misma interacción en un cristal similar cortado a un ángulo que anulaba a $\text{sen}3\phi$. De este resultado se concluyó que los coeficientes d_{15} y d_{22} en el LiNbO_3 tenían signos opuestos.

Por último, nótese que elegido el tipo de interacción es posible maximizar la susceptibilidad d_{eff} variando el ángulo ϕ que permanece libre.

2.5 Desventajas de el acoplamiento de fase por orientación.

Se vio en el capítulo 1 que la dirección del rayo y la dirección de la normal a la onda forman un ángulo de doble refracción ρ para una onda extraordinaria. Este ángulo de doble refracción ρ sólo se anula cuando $\theta=0$ o cuando $\theta=90^\circ$. Por lo tanto, en una interacción con acoplamiento de fase a un ángulo θ intermedio la energía del rayo extraordinario no se traslapa con la energía de los rayos ordinarios en la longitud de interacción entera, estando limitada, así, la interacción a un volumen efectivo.

Tomando como ejemplo la generación de segundos armónicos, ya que $\rho \neq 0$ para alguno de los rayos (cualquiera que sea la onda extraordinaria), encontraremos que los rayos se separarán (o desvan) a una distancia del orden:

$$l_0 = a/\rho \quad (12)$$

llamada longitud de apertura, donde a es el diámetro del rayo (apertura). Se indica en la figura (4) que la GSA toma lugar a lo largo del rayo láser pero la longitud sobre la cual el armónico puede crecer está limitada por l_0 .

Para una interacción tipo I este efecto, aunque presente, no es demasiado serio. Sólo significa que el rayo generado no se traslapa totalmente con la onda de polarización, y por lo tanto, la integración en la ecuación (3-33) llega a ser más complicada. La forma exacta de la integración tiene que realizarse para cada caso específico. En general, encontramos que la salida no es proporcional al cuadrado; sino a una potencia más baja de la longitud.

Para una interacción tipo II el efecto es más serio, puesto que aquí los dos rayos fundamentales no se traslapan completamente; por lo que después de una cierta longitud del cristal la onda de polarización se anula completamente cesando el mezclado.

Otra limitación de acoplamiento de fase por orientación es debida a la divergencia del rayo enfocado. Ilustrando esto para el caso general de generación de segundos armónicos. Para GSA en un cristal negativo y una interacción tipo I encontramos de la ecuación (3-32) que:

$$\Delta k = \frac{2\omega_1}{c} \left[n_2^o(\theta) - n_1^o \right] \quad (13)$$

Si $\theta = \theta_m$; $\Delta k = 0$; pero para una pequeña desviación $\Delta\theta$ de este ángulo, encontramos; usando la ecuación (2-48), que:

$$\Delta k = - \frac{\omega_1}{c} (n_1^o)^3 \left[(n_2^o)^{-2} - (n_2^o)^{-2} \right] \text{sen} 2\theta_m \Delta\theta \quad (14)$$

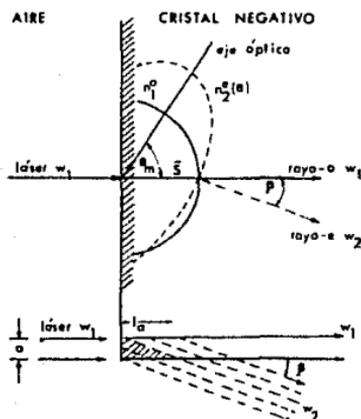


FIG. 4. CONDICIONES DE ACOPLAMIENTO DE FASE TIPO II PARA UN CRISTAL UNIAXIAL NEGATIVO. TAMBIEN SE ILUSTRAN EL ANGULO DE DESVIACION ρ ; EL EFECTO LIMITANTE DE LA DESVIACION PARA UN RAYO LASER FINITO DE APERTURA, l_a Y LONGITUD DE APERTURA l_p .

Similarmente para un cristal positivo y un proceso tipo I, se encuentra que:

$$\Delta k = - \frac{\omega_1}{c} (n_2^o)^3 \left[(n_2^o)^{-2} - (n_2^o)^{-2} \right] \text{sen} 2\theta_m \Delta\theta \quad (15)$$

Para interacciones tipo II se demuestra fácilmente que esta diferencia de k se reduce por un factor de 2. En el caso de cristales con birrefringencia y dispersión pequeñas, esta misma expresión puede aproximarse a:

$$\Delta k \approx \beta \frac{2\pi}{c} (n^2 - n^*) \sin 2\theta_m \Delta\theta$$

Donde β tiene el mismo signo que la birrefringencia del cristal y es igual a 1 para interacción tipo I y a $\frac{1}{2}$ para interacción tipo II.

De esta última expresión vemos que la variación de Δk es lineal con $\Delta\theta$. En la práctica esto puede causar dificultades para ángulos intermedios θ_m . Para comprender esto basta considerar que la intensidad armónica generada es proporcional a la densidad de energía de la frecuencia fundamental. Luego, si se desea que la intensidad armónica alcance su valor máximo será necesario enfocar el rayo fundamental sobre el cristal, incrementándose así $\Delta\theta$, y como consecuencia también Δk . De cualquier manera; la variación lineal de Δk con $\Delta\theta$ significa que para una convergencia del rayo, el acoplamiento de fase eficiente se obtendrá sólo sobre una longitud restringida del cristal.

2.6. Acoplamiento de fase dependiente de la temperatura.

La desventaja mencionada en la última sección puede minimizarse haciendo el ángulo θ_m igual a 90° . La desviación del rayo extraordinario es entonces inexistente. De las ecuaciones (13) y (14) vemos que, a valores de θ_m cercanos a 90° se tiene $(\sin 2\theta_m)^2 \approx 2 \cos 2\theta_m^2$, por lo tanto, podemos escribir:

$$\Delta k = \frac{2\omega_1}{c} (n_1^*)^3 \left[(n_2^o)^{-2} - (n_2^*)^{-2} \right] (\Delta\theta)^2$$

para cristales positivos. La expresión para cristales negativos es:

$$\Delta k = \frac{2\omega_1}{c} (n_2^*)^3 \left[(n_2^o)^{-2} - (n_2^*)^{-2} \right] (\Delta\theta)^2$$

Para interacciones tipo II, las diferencias son otra vez menores por un factor de 2. Así vemos que para $\theta_m = 90^\circ$ la divergencia permitida de los rayos es mucho mayor. Además; no hay efectos de desviación de primer orden debido a doble refracción, ya que en este caso $\rho = 0$ ($l_a \approx \infty$).

Para estas razones, el acoplamiento de fase a 90° es frecuentemente llamado *acoplamiento de fase no crítico*. Puede obtenerse en algunos cristales (Ej. LiNbO_3) variando la temperatura del cristal; el índice extraordinario es en general mucho más dependiente de la temperatura que el índice ordinario. Luego mediante cambios en la temperatura es posible cambiar la birrefringencia hasta que el acoplamiento de fase se obtenga para

$$\theta_m = 90^\circ.$$

En generación de frecuencia diferencia en los casos donde la frecuencia diferencia cae del otro lado de la banda *reststrahlen* (banda de absorción infrarroja), el acoplamiento de fase dependiente de la temperatura podría aun ser posible para el caso de un cristal birrefringente.

Una variación de la temperatura cambia la posición del borde de absorción y, por lo tanto, cambia los valores de los índices de refracción de las dos frecuencias de entrada, mientras que el índice de refracción de la frecuencia diferencia cambia relativamente poco. Esto fue demostrado en InSb usando 1040 y 940 cm^{-1} , observándose el acoplamiento de fase a una temperatura de -40°C .

La temperatura exacta para acoplamiento de 90° puede variarse cambiando la composición química del cristal.

2.7. Otros métodos de acoplamiento de fase.

Además de el acoplamiento de fase mediante birrefringencia del cristal; toda una variedad de otros métodos han sido usados para lograr $\Delta k=0$; tales como acoplamiento en medios ópticos activos y acoplamiento magneto-óptica. Esta última se emplea particularmente en la generación de frecuencia diferencia infrarroja lejana, producida por mezclado de láseres CO_2 en cristales cúbicos semiconductores (los más apropiados en esta región óptica); tales como InSb, GaAs, CdTe, etc.

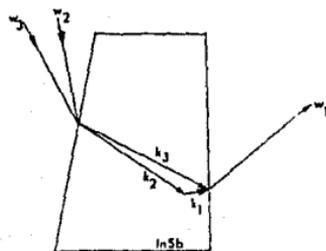


FIG. 5. INTERACCION CON ACOPLAMIENTO DE FASE PARA RAYOS NO-COLINEALES.

El método de acoplamiento magneto-óptico utiliza la contribución $\epsilon_1(\omega)$ del plasma de electrones libres a la constante dieléctrica para cancelar la contribución $\epsilon_2(\omega)$ de los electrones amarrados de la lattice, aprovechando el hecho de que ambas contribuciones son de signos opuestos.

El semiconductor se somete a un campo magnético que varía la contribución magnetoplásmica del índice de refracción, con el objeto de ajustar la condición de acoplamiento de fase a distintas frecuencias diferencia (Ref. 75 p. 34).

En aquellos casos donde $k_1 + k_2 = k_3$, el acoplamiento de fase puede realizarse haciendo que la interacción ocurra entre rayos no colineales. Si la diferencia en frecuencia entre las entradas y las salidas es grande, grandes ángulos pueden formarse entre los rayos dentro del cristal, además si el cristal tiene un índice de refracción alto, los ángulos pueden llegar a ser lo suficientemente altos como para permitir que la reflexión total interna ocurra en la cara de salida.

Un caso típico se ilustra en la figura (5), donde las dos entradas fueron 1080 y 945 cm^{-1} . La figura revela que el cristal se creció en la forma de un prisma para permitir una salida acoplada.

3. Dimension finita del rayo.

El análisis hasta ahora ha considerado los rayos fundamentales de extensión infinita; pero esta suposición es claramente no muy realista. Tomando como ejemplo la GSA, es relativamente simple alterar la expresión de la potencia generada $W(2\omega)$ (ecuación 3-46) al caso de un rayo con área A cm^2 y potencia $W(\omega)$ para obtener (en unidades c.g.s.):

$$W(2\omega) = \frac{512\pi^5 d^2 L^2 W^2(\omega)}{n(2\omega)n^2(\omega)\lambda^2 A}$$

En la figura (6) se compara la GSA producida por un láser de neodimio (con longitud de onda de 1.05 μm) al incidir en un cristal LiNbO_3 ; cuando se aplica el área del rayo de $A = 1 \text{ cm}^2$ a $A = 0.01 \text{ cm}^2$, lo que produce una ganancia $W(2\omega)/W^2(\omega)$ de 100. La expresión anterior supone que el área A es lo suficientemente grande para que, a través del cristal mezclante, el rayo láser tenga aproximadamente el mismo diámetro.

Claramente si A se hace demasiado pequeño, la difracción produciría que el rayo divergiera; y la ecuación anterior dejaría de ser válida.

Se debe también recordar que en cualquier acoplamiento de fase realizado en un lugar distinto al plano cristalino x-y (i.e., en un ángulo distinto de 90° respecto al eje óptico), los rayos fundamental y de segundos armónicos físicamente se separan uno del otro, puesto que son necesariamente de polarización opuesta. Para un cristal uniaxial, la cantidad de esta desviación es rápidamente medida de la relación, entre las direcciones del rayo

y la normal a la onda (ecuación 2-49).

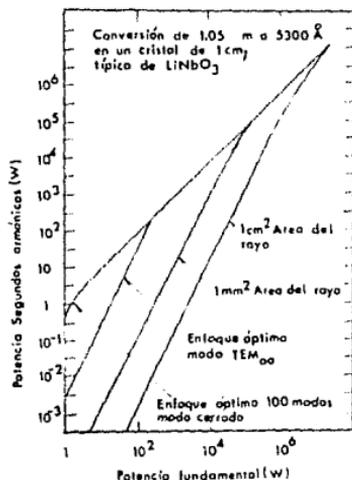


FIG. 6. CURVAS TEORICAS DE POTENCIA DE SEGUNDOS ARMONICOS CONTRA POTENCIA FUNDAMENTAL PARA DIFERENTES CONDICIONES. EL CRISTAL SE CONSIDERA QUE POSEE PARAMETROS TIPICOS DEL LiNbO_3 CON 1 cm DE LARGO. LA FUENTE LASER SE CONSIDERA QUE ESTARIA A APROXIMADAMENTE 1 μ .

Por lo tanto, mientras se asegure que ni la desviación ni la divergencia serán dominantes, la reducción del área del rayo o enfoque del láser dentro del cristal aumentará sustancialmente la eficiencia de la GSA.

De aquí vemos la necesidad de un grado óptimo de enfoque. Si el láser se enfoca en forma demasiado ligera; los rayos no estarán lo suficientemente concentrados para una operación eficiente. Si los rayos están enfocados en forma demasiado estrecha, la eficiencia podría limitarse por la excesiva divergencia de los rayos así producidos, tanto como por la separación física de las ondas armónicas y fundamental.

El análisis detallado de esta situación es complejo, y una solución general no ha sido obtenida para el caso de propagación en un cristal uniaxial. De cualquier manera, en un examen exhaustivo del problema, Boyd y Kleinman mostraron que puede simplificarse de varias maneras (Ref. 41 capítulo 2), tal que

resultados numéricos pueden obtenerse para cualquier caso de interés utilizando datos gráficos de soluciones por computadora. En particular, ellos demostraron que para acoplamiento de fase en un cristal uniaxial a un ángulo finito respecto al plano x-y, existen valores óptimos para la longitud del cristal y el radio de la mancha focal, una vez que los parámetros del cristal son conocidos y las longitudes de onda están especificados.

Los mismos autores también mostraron que no hay una longitud óptima del cristal en la cual el acoplamiento sea posible en el plano x-y (e.g., niobato de litio) aunque exista para una longitud un radio óptimo de mancha focal.

En esta situación ellos expresan la potencia de segundos armónicos en unidades c.g.s., de la siguiente forma:

$$W(2\omega) = \frac{1024 \pi^3 L \left[1.068 W^2(\omega) \right] d^2}{n(\omega)n(2\omega) \lambda^3 c} \quad (16)$$

El radio óptimo de mancha para el rayo gaussiano es w_0 , el perfil del rayo se describe por la función $\exp(-r^2/w^2)$ y la cantidad w_0 se relaciona con la longitud del cristal a través de:

$$w_0 = \sqrt{b\lambda/2\pi} \quad (17)$$

$$b = L/2.84$$

La terminología usada es comúnmente empleada en la descripción de rayos láser monomodo transversales, donde b es el parámetro confocal para un láser de gas produciendo el modo de más bajo orden descrito por w_0 . A una distancia más allá del foco, tal rayo tiene radio de mancha w^1 , donde:

$$w^1 = w_0 \sqrt{1 + 4z^2/b^2} \quad (18)$$

Cualquiera de los parámetros w_0 o b , junto con la longitud de onda y la posición del foco, es suficiente para especificar el perfil del rayo a la intensidad en cualquier posición en el espacio.

Estas relaciones fueron derivadas primero por Boyd y Kogelnik en la consideración de los modos de propagación para luz dentro de un resonador láser típico.

Si tomamos ahora la ecuación (17) y (otra vez) sustituimos los valores numéricos representativos de un cristal de niobato de litio con longitud de 1 cm, considerando la longitud de la onda fundamental igual a $1.06 \mu\text{m}$, obtendremos el segundo resultado mostrado en la figura (8), ilustrando el dramático aumento en la eficiencia en la conversión que puede obtenerse utilizando un rayo enfocado apropiado. Esta técnica ha sido usada, junto con otras (resonador), para obtener eficiencias promedio en la

¹ En un resonador confocal b = radio de curvatura de los espejos = espaciado de los espejos.

conversión muy altas a partir de láseres cw de baja potencia media.

El resultado anterior se aplica a rayos láser monomodos transversales. En el caso más general de un láser multimodo, dos aproximaciones son posibles.

Si la estructura modal se conoce en una forma matemática, cálculos similares a los de Boyd y Kleinman podrían realizarse para el caso de interés. En la mayoría de las veces, de cualquier forma, sólo parámetros gruesos del rayo láser, tales como la divergencia del rayo y su área en algún punto del espacio, son conocidos, y la distribución exacta de fase a través del rayo se desconoce.

Bajo estas condiciones es útil estimar la tolerancia de la GSA con acoplamiento de fase para rayos divergentes y para posibles fuentes de gran anchura espectral.

La condición de acoplamiento de fase $\Delta k = k_z - 2k_\omega = 0$ se satisface sólo para una longitud de onda en cada dirección del cristal. No obstante, la GSA no varía como $\delta(\Delta k)$; sino como $\text{sen}^2(\Delta kL/2) \sim (\Delta kL/2)^2$, y esto permite una pequeña tolerancia $\Delta k = \pi/L$; donde L es la longitud del cristal. Esto a su vez se relaciona con una pequeña tolerancia angular, la cual puede calcularse de las ecuaciones (14) y (15).

De una manera muy similar podemos estimar el efecto de un pequeño cambio de frecuencia de la fuente calculando $\delta(\Delta k) \sim \delta\omega = \pi \cdot (L \cdot \Delta\omega)$.

$$\Delta\omega = (\pm) \frac{\pi}{L} \left[\frac{\partial k(2\omega)}{\partial \omega} - \frac{\partial k(\omega)}{\partial \omega} \right]^{-1}$$

Para una fuente fundamental de banda ancha, la potencia del segundo armónico no consiste sólo de cada una de las frecuencias fundamentales dobladas; también contiene combinaciones (i.e., si la fuente contiene ω y $\omega + \Delta\omega$ entonces a segundos armónicos obtenemos 2ω , $2\omega + \Delta\omega$ y $2(\omega + \Delta\omega)$). Estas circunstancias conducen a los efectos adicionales que examinaremos en la siguiente sección.

4. Efectos de la estructura modal en GSA.

Una porción muy pequeña de láseres usados en la actualidad operan en verdad en un solo modo longitudinal, es decir, en una sola frecuencia con un frente de onda propagándose a lo largo del eje de la cavidad, poseyendo un perfil de intensidad gaussiano. La mayoría de los láseres de gas tienen el perfil de intensidad del modo TEM₀₀; pero un examen de su espectro de frecuencia indica que ellos producen un serie de frecuencias discretas espaciadas por $c/2L$ Hz, donde c es la velocidad de la luz y L es la longitud del resonador láser. En general, para cada uno de los "modos longitudinales" existe frecuentemente una multitud de modos transversales, y el perfil de intensidad de la salida no es gaussiano, no tiene, por lo tanto, una distribución de fase simple a través de él. Tales distribuciones de fase y de frecuencia complejas de la potencia disponible tienen un efecto sorprendente sobre la GSA, ya que bajo ciertas condiciones aumenta la eficiencia con la cual una cantidad dada de potencia se convierte a segundos armónicos. Al mismo tiempo, las

relaciones de fase azarosas y variantes con el tiempo entre los modos producen que la potencia a segundos armónicos fluctue de una manera parecida al ruido, aun cuando la potencia fundamental permanezca constante.

Podemos ver intuitivamente porque esta estructura modal conduce a un aumento en la razón de generación media si tenemos en mente que el campo eléctrico de segundos armónicos depende de $E^2(\omega)$ más que de $E(\omega)$. La salida temporal del láser multimodo se asemeja al ruido, pero tiene una estructura periódica que se repite cada $2L/c$ y sólo cambia su forma detallada después de tantos ciclos como los necesarios para que las fases relativas de los modos se amortiguen (ver figura 7).

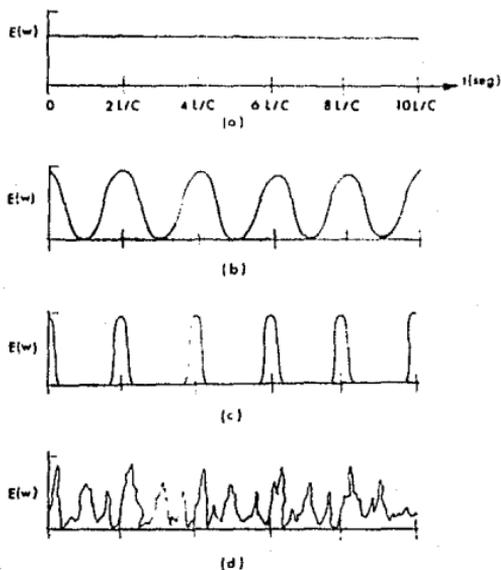


FIG. 7. LOS EFECTOS DE MODOS MÚLTIPLES EN LA SALIDA TEMPORAL DE UN LASER: (a) MONOMODO ESTABILIZADO (b) DOS MODOS ESTABILIZADOS (c) MODOS MÚLTIPLES EN FASE CERRADA (d) MODOS MÚLTIPLES EN FASE AL AZAR.

El proceso de GSA naturalmente gana más de los picos de esta

formas de onda de ruido que de los valles, y en promedio una ganancia en la conversión se obtiene. Un análisis amplio de este efecto fue primero presentado por Ducuing y Bloembergen.

Es importante mencionar en este momento que una descripción formal de este problema es muy compleja, de hecho en la actualidad la búsqueda de tal descripción está abierta a la investigación. Por lo tanto, el análisis teórico que se presenta a continuación para explicar los mecanismos de realce es sólo una aproximación sencilla.

Tomando en cuenta la advertencia anterior consideremos la mencionada teoría para ilustrar los mecanismos de realce. Supongamos que la salida láser puede describirse como una suma de modos, uniformemente espaciados en frecuencia y de esencialmente igual amplitud; teniendo la misma intensidad y perfiles de fase. Tal descripción se ajusta a la mayoría de los láseres de gas y a muchos láseres de estado sólido operando en el modo TEM₀₀. Así que:

$$E_f = \sum_{n=1}^N \xi_n e^{i(\omega_n t - \phi_n)}$$

$$= \sum_{n=1}^N A_n e^{i\omega_n t}$$

Donde $A_n = \xi_n e^{-i\phi_n}$ y el entero corre de 1 a N. La potencia láser está entonces dada por $S(\omega) \approx \sum_{n=1}^N A_n A_n^* = NA_n^*$. El campo eléctrico de segundos armónicos está dado por una expresión de la forma:

$$E(2\omega) = X \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^N A_n A_m e^{i(\omega_1 + \omega_2)t}$$

Con X obtenido de la ecuación (3-34).

Y la intensidad debida al campo multimodo, como la que sería vista por un detector de ley al cuadrado tal como un fotomultiplicador, es de la forma:

$$I(2\omega)_{mm} = X^2 \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^N \sum_{o=1}^N \sum_{p=1}^N A_n A_m A_o A_p^* e^{i(\omega_n + \omega_m - \omega_o - \omega_p)t}$$

Si suponemos un acoplamiento de fase para todas las combinaciones de los modos fundamentales. De la multitud de componentes de frecuencia contenidas dentro de la expresión para $I(2\omega)_{mm}$, sólo aquéllas que caen dentro de la anchura de banda del detector son registradas. Luego, imponiendo la condición de que

la señal $I(2\omega)$ será detectada si $\omega_n + \omega_m - \omega_o - \omega_p = 0$, es posible seleccionar, de la suma general, aquellos términos que son dependientes de la fase y aquellos que no lo son. La fase del término $A_n A_m A_o A_p$ es $\phi_n + \phi_m - \phi_o - \phi_p$; siendo la suma independiente de la fase sólo cuando $n=m=o=p$; cuando $n=o$ y $m=p$, y cuando $n=p$ y $m=o$. Por lo tanto los términos independientes de la fase son:

$$\begin{aligned} \langle I(2\omega)_{if} \rangle &= \alpha^2 \sum_1^N (A_n A_n^M)^2 + 2\alpha^2 \sum_{n=1}^N \sum_{n \neq m}^N A_n A_n^M A_m A_m^M \\ &= \alpha^2 [N + 2N(N-1)] (A_n A_n^M)^2 \end{aligned}$$

Especificando que la suma incluye sólo términos independientes de la fase, seleccionamos la intensidad media temporal. Los términos restantes en la suma que satisfacen la condición sobre las frecuencias pero que incluyen fases azarosas no cancelantes están variando lentamente con el tiempo en sus amplitudes relativas, debido a los efectos de interferencia de las mencionadas fases azarosas. El espectro de frecuencias de estos términos se componen de las frecuencias dadas por $\Delta\omega_n = \langle \partial\phi_n / \partial t \rangle$.

Ahora si se hubiera usado la potencia de ω a una sola frecuencia para generar segundos armónicos, se habría obtenido:

$$\langle I(2\omega) \rangle_{om} = \alpha^2 N^2 (A_n A_n^M)^2$$

de la cual

$$\frac{\langle I(2\omega)_{if} \rangle}{\langle I(2\omega) \rangle_{om}} = 2 - \frac{1}{N}$$

Para un gran número de modos, esta solución corresponde a un realce de 2 en la potencia media generada. De cualquier manera; dentro de ella permanecen los términos en la potencia de segundos armónicos que dependen críticamente de la fase relativa entre modos, y esto produce fluctuaciones de ruido en la parte superior de la potencia media escrita anteriormente.

Ducuing y Bloembergen estimaron el valor de las fluctuaciones raíz media cuadrática en la potencia de segundos armónicos en un 18% para $N=3$, y del 25% para $N=4$; para N mayor ellos encontraron que este valor está dado por $\sqrt{\frac{2}{3}N}$.

Por lo tanto, hemos encontrado que aunque el uso de un láser multimodo puede aumentar la eficiencia media en la conversión, también introduce en la salida un factor azaroso que puede ser problemático en muchas aplicaciones.

Puesto que en la práctica, usualmente buscamos la máxima eficiencia posible en GSA, estamos obligados a buscar otras formas de incrementar la eficiencia en GSA, una de tales formas se encuentra en el uso de fuentes láser de modo cerrado.

5. GSA de un láser modo cerrado (mode-locked).

La única característica de un láser modo cerrado es que en puntos regulares del tiempo espaciados por $2L/c$, todos los modos longitudinales se encuentran en fase. Por consiguiente, podemos escribir el campo eléctrico de tal láser de la siguiente forma:

$$E_r = \sum_{n=1}^N A_n e^{i(\omega_n t + \Delta\omega t)}$$

$$\Delta\omega = \pi c/L$$

Donde los A_n son todos reales y de similar amplitud (suposición hecha para simplificar el resultado). Así a $t=0$ todos están en fase y también, probablemente, a cada $t=2L/c$. Esto hace que la salida del láser aparezca como un tren de pulsos uniformemente espaciados con una razón del espaciamiento entre pulsos a la anchura de pulso de aproximadamente N , con un espaciado de $2L/c$.

Siguiendo el mismo procedimiento de la sección anterior es posible demostrar que la eficiencia de la potencia promedio de segundos armónicos producida por un láser de modo cerrado a la potencia de GSA producida por una sola frecuencia, es igual a:

$$\frac{I(2\omega)_{\text{seg}}}{I(2\omega)_{\text{GSA}}} = \frac{2N^2 + 1}{3N}$$

Para un gran número de modos N , esto claramente se reduce a $\frac{2N}{3}$.

Para un láser Nd:vidrio, N podría ser tan grande como 1000.

Se debe recordar, sin embargo, la suposición de que el acoplamiento de fase se mantiene en todo la anchura de banda de frecuencias fundamentales. En la práctica, esto frecuentemente llega a ser una limitación seria.

Para un láser Nd:YAG de onda continua, N es típicamente del orden de 10^7 . Luego para un modo TE_{00} modo cerrado totalmente; un láser de 1 W con un cristal $LiNbO_3$ de 1 cm de largo, y teniendo enfoque óptimo, es posible generar en forma continua aproximadamente 90 mW de luz verde. Esto representa una eficiencia de sólo aproximadamente el 10%, a pesar de tener un factor del 88 de ganancia del modo cerrado.

6. Materiales no lineales.

Todo cristal no lineal utilizado en la generación eficiente de procesos no lineales de segundo orden y en la aplicación instrumental de estos procesos debe poseer las siguientes propiedades:

- i) No linealidad adecuada.
- ii) Transparencia óptica.
- iii) Birrefringencia apropiada para el acoplamiento de fase.
- iv) Suficiente resistencia al daño óptico para irradiación óptica intensa.
- v) Alta calidad óptica.

1) No linealidad.

Conocido el hecho de que la eficiencia en la interacción de tres ondas depende del cuadrado de los coeficientes no lineales, el primer paso para saber si un cristal es un buen medio no lineal consiste en determinar su susceptibilidad d_{ij} .

Como ya se mencionó la regla empírica de Miller representó el primer método para predecir d_{ij} . En ella se establece que un material debe tener un gran índice de refracción para que su susceptibilidad d_{ij} sea de una magnitud adecuada. Esta regla ha permitido encontrar nuevos materiales con susceptibilidades grandes, como son los cristales con estructura de calcopirita perteneciente a la clase 42m (CdGeAs_2 , ZnGeF_2 , ...).

Para medir la susceptibilidad d_{ij} de un cristal utilizando la regla de Miller se necesita medir con precisión el índice de refracción y la delta de Miller, lo que requiere de un conocimiento previo de la estructura cristalina del material. Si el material se estudia por primera vez, es necesario, por lo tanto, analizar antes la estructura del cristal representando esto un gran inconveniente.

Existen otros métodos que eliminan este problema, los cuales pueden dar una medida absoluta o comparativa de d_{ij} .

Un ejemplo de los métodos que determinan en forma absoluta a d_{ij} lo representa la GSA. Basado en la Ec. (3-46) el método de GSA necesita para estimar d_{ij} de medidas con alta precisión de la potencia fundamental, de la potencia de segundos armónicos, y de la estructura modal espacial y temporal del rayo laser utilizado. Todas estas medidas son difíciles de realizar con certidumbre; y todas ellas tienen crucial importancia en la determinación absoluta de d_{ij} .

Otros métodos de este tipo son el mezclado y la fluorescencia (generación) paramétrica.

En los métodos de medida comparativa de d_{ij} , la susceptibilidad del cristal se mide con respecto a la susceptibilidad de un cristal patrón. El más ampliamente usado y mejor tabulado material de referencia es el ADP (fosfato dihidrógeno de amonía). La no linealidad óptica de este material

ha sido medida con gran precisión, resultando igual a $d_{221} = d_{123} = (1.35 \pm 0.06) \times 10^{-9}$ ues (Ref. 93, tabla 21.1, p. 345).

Aunque el ADP está bien caracterizado; otros materiales también se han usado como referencia en la literatura publicada. Particularmente comunes a este respecto son el cuarzo y el fosfato dihidrógeno de potasio (KDP).

Los métodos comparativos son más simples, ya que no necesitan de mediciones absolutas de las potencias ópticas, ni de generaciones con acoplamiento de fase. Por estas razones la calidad de los cristales usados es menos crucial, y las características del láser no necesitan conocerse con precisión puesto que las medidas en la referencia son igualmente efectuadas.

Los métodos comparativos son tres: técnica de polvos, método de franjas de Maker y técnica de cuña. De estos métodos es la técnica de polvos la que ofrece más ventajas.

Descrita en 1968 por S. K. Kurtz, la técnica de polvos representa el primer medio real para visualizar experimentalmente la actividad no lineal de un gran número de materiales desconocidos; sin la necesidad de realizar la lenta y cara tarea del crecimiento del cristal con buena calidad óptica para cada material. Kurtz mostró que era posible, por mediciones en polvos, aseverar si un cristal tiene no linealidad grande o pequeña y si puede o no realizar el acoplamiento de fase. Con esta información y con los datos comúnmente conocidos de las propiedades del cristal, la probabilidad de seleccionar un material para crecer, el cual sea posteriormente útil, aumenta drásticamente.

Una descripción de la técnica de polvos y el método de franjas puede verse en Zernike y Midwinter capítulo 4.

ii) Transparencia óptica.

Otra de las características que debe tener un "buen" cristal no lineal es la baja absorción o transparencia a las frecuencias incidentes y generada. La pérdida de transmisión a estas frecuencias reduce la intensidad no lineal generada y obliga a incluir en su expresión el efecto de absorción.

Tomando como ejemplo la generación de segundos armónicos, la expresión de la intensidad generada en este proceso, cuando el efecto de absorción está incluido, es igual a:

$$S(2\omega) = \frac{512n^3 d^2 L^2}{n(2\omega)n^2(\omega)\lambda^2 c} S^2(\omega) \times \left[\frac{e^{-\alpha_2 L}}{(2\omega)^2 + \left[\frac{1}{2} \Delta\alpha L \right]^2} - \frac{1 + e^{-\Delta\alpha L} - 2^{-(1/2)\Delta\alpha L} \cos(\Delta k L)}{(2\omega)^2 + \left[\frac{1}{2} \Delta\alpha L \right]^2} \right]$$

Con $\Delta\alpha = 2\alpha_1 - \alpha_2$ y α_1, α_2 las pérdidas por unidad de longitud de las ondas fundamental y de segundos armónicos respectivamente.

La intensidad $S(z, \omega)$ se deriva de la solución de las ecuaciones de onda acopladas

$$\frac{d}{dz} A_2(z, \omega) + \alpha_2 A_2(z, \omega) = -i \frac{16\pi\omega_1^2}{k_2 c^2} A_1^2(z) e^{i\Delta k z}$$

$$\frac{d}{dz} A_1(z, \omega) + \alpha_1 A_1(z, \omega) = -i \frac{8\pi\omega_2}{k_2 c^2} A_1^M(z) A_2(z) e^{i\Delta k z}$$

con:

$$\alpha_1 = \frac{2\pi\sigma_1}{c n(\omega)}$$

$$\alpha_2 = \frac{2\pi\sigma_2}{c n(2\omega)}$$

σ_1 y σ_2 son las conductividades a ω y a 2ω respectivamente.

Bajo acoplamiento de fase el factor de reducción se aproxima a $e^{-\alpha_2 z} e^{-\alpha_1 z}$. Un cristal de 1 cm con pérdidas de 0.06 cm^{-1} y 0.025 cm^{-1} a 2ω y ω bajo $\Delta k=0$ reduce su eficiencia a 0.95; lo cual es despreciable. Sin embargo, en un cristal de 5 cm las mismas pérdidas reducen la eficiencia por un factor de 0.77, lo cual ya es significativo.

Los materiales óxidos de alta calidad óptica tienen pérdidas dentro del rango de 10^{-3} a 10^{-5} ; mientras que los materiales semiconductores presentan pérdidas mayores dentro del rango de 1 cm^{-1} a 10^3 cm^{-1} .

La reducción de las pérdidas ópticas en un cristal no lineal es importante si se desea producir una interacción no lineal eficiente. Esta reducción llega a ser aun más importante si el cristal se utiliza en alguna aplicación instrumental (oscilador paramétrico, etc.).

Las pérdidas por absorción en un material son producidas por la brecha fundamental a borde de absorción a altas frecuencias y por la absorción de 2 fotones a bajas frecuencias.

Los cristales son en general transparentes en rangos de frecuencia muy baja que van de cd al primer modo vibracional. Por lo tanto, es posible que las interacciones no lineales de tales ondas puedan producirse de manera eficiente desde el ultravioleta pasando por el visible y el infrarrojo cubriendo un rango completo de frecuencia de 1300 Å a 18 μm . Claro está que para cubrir este intervalo de frecuencias es necesario intersectar rangos de transparencia de distintos cristales (óxidos, semiconductores, etc.); los cuales además de ser transparentes deben poseer la birrefringencia adecuada para el acoplamiento de fase. Este hecho ha sido ya demostrado utilizando sólo unos cuantos tipos de cristales.

Es importante mencionar, que cristales que puedan ser bien crecidos; sean transparentes; y tengan la birrefringencia apropiada para satisfacer el acoplamiento de fase, son muy raros de encontrar entre todos los cristales acéntricos conocidos. Por ejemplo, entre los 13,000 cristales conocidos sólo 684, o 5.25%, son uniaxiales y con acoplamiento de fase; y de estos menos de la

mitad tienen no linealidad mayor que la del KDP y muchos menos son tratables para el crecimiento de cristal en dimensiones de centímetros con alta calidad óptica.

Por último, es necesario aclarar que el caso ideal de absorción cero a las frecuencias incidente, y generada, es imposible de realizar. Lo anterior se demuestra observando las partes real ϵ_r e imaginaria ϵ_i de la constante dieléctrica $\epsilon(\omega) = n^2$ del medio no lineal a una frecuencia ω , ambas expresadas a través de las relaciones de Kramer-Kronig.

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + \frac{4\pi}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{\omega' \epsilon_i(\omega') d\omega'}{(\omega')^2 - \omega^2}$$

$$\epsilon_i(\omega) = -\frac{4\pi}{\pi} P \int_0^{\infty} \frac{\omega' \epsilon_r(\omega') d\omega'}{(\omega')^2 - \omega^2}$$

Donde P es el valor principal de Cauchy de la integral

$$P \int_0^{\infty} \frac{1}{\omega' - \omega} d\omega' \equiv \lim_{\alpha \rightarrow 0} \left[\int_0^{\omega - \alpha} \frac{1}{\omega' - \omega} d\omega' + \int_{\omega + \alpha}^{\infty} \frac{1}{\omega' - \omega} d\omega' \right]$$

una absorción cero para una onda electromagnética a una frecuencia ω equivaldría a anular ϵ_i , pero esto es imposible ya que la interdependencia entre ϵ_r y ϵ_i anularía también a ϵ_r . Por lo tanto debe existir siempre un equilibrio entre ϵ_r y ϵ_i (como consecuencia se espera también un equilibrio entre $\text{Im}(n^2)$ y $\text{Re}(n^2)$).

111) Birrefringencia y acoplamiento de fase.

Aún cuando algunos de los materiales con mayor susceptibilidad d_{ij} (e.g., arseniuro de galio) son no birrefringentes, su valor para aplicaciones no lineales está limitado por la falta de acoplamiento de fase. Como ilustración, la GSA en cristales cúbicos que carecen de birrefringencia, y por ende presentan diferencia de fase, sólo puede realizarse a un distancia de una longitud de coherencia, la cual varía entre 10 μm y 100 μm . Puesto que la eficiencia de GSA es una función del cuadrado de la longitud de interacción, las interacciones sin acoplamiento de fase son entre 10^{-5} a 10^{-4} veces menos eficientes que las interacciones con acoplamiento sobre un cristal con 1 cm de longitud.

La enorme mejoría en la eficiencia en la conversión debido a el acoplamiento de fase hace de esta condición un requisito

esencial en cristales no lineales. Por lo tanto si un cristal es no lineal y transparente debe todavía tener acoplamiento de fase para ser útil. Esta condición, como hemos visto, la satisfacen con exactitud los cristales birrefringentes.

El estudio para conocer si un cristal no lineal posee la birrefringencia adecuada para el acoplamiento. Se inicia con la determinación de las relaciones de dispersión del cristal a las ondas incidentes y generadas $n(\omega_1)$, $n(\omega_2)$ y $n(\omega_3)$; analizando posteriormente a que ángulo θ_m se satisface la condición de acoplamiento de fase. Para GSA tipo I esta condición toma la forma

$$n_o^w = n_e^{2w}$$

Típicamente, el índice de refracción se mide exactamente a la frecuencia fundamental y el índice armónico se estima de las relaciones de Sellmeier usando los coeficientes del material.

Ec. de Sellmeier:

$$n_e^2 - 1 = 4\pi N_e \chi^{(2)}(\omega)$$

Donde $\chi^{(2)}(\omega)$ es la susceptibilidad por átomo a ω dada por:

$$\chi^{(2)}(\omega) = \frac{e^2}{4\pi^2} \sum \frac{f_n}{(\omega_n^2 - \omega^2)}$$

Donde $e = 2.918 \times 10^{-19}$ cm, ω_n es la longitud de onda de la n -ésima transición, f_n es la potencia del oscilador a la n -ésima transición, con ω a ω en cm.

En general: para interacciones de tres ondas un pequeño programa de computación es usualmente escrito con el fin de resolver las ecuaciones simultáneas $k_3 = k_1 + k_2$ y $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ derivando de ahí el valor de θ_m .

Los cristales no lineales deben tener también birrefringencia muy uniforme sobre la longitud y la sección transversal del cristal para una conversión no lineal eficiente. Por lo tanto, la uniformidad de la birrefringencia es uno de los más estrictos requisitos en el crecido de cristales no lineales. Estudios sobre este tema, han demostrado que muchos procesos de crecimiento de cristales tienden a alterar la composición química, y por consiguiente, afectan también al índice de refracción. Por ejemplo, en el crecido de niobato de litio por el método Czochralski a partir de una mezcla compuesta de Li_2O_3 y NbO_5 combinados en iguales porciones, se ha encontrado que al extraer el cristal éste no es exactamente $LiNbO_3$; sino que difiere por

una pequeña cantidad de la composición exacta, siendo rico el cristal al final en Nb_2O_5 . Es necesario para compensar esto iniciar el proceso con una mezcla rica en Li_2O .

También se han detectado cambios en la composición de la sección transversal del mismo cristal debido a cambios locales en la temperatura.

La eficiencia en la conversión se reduce también por la ruptura de el acoplamiento de fase producida por los cambios en la birrefringencia del cristal inducidos térmicamente o por reordenamiento de cargas dentro del cristal (efecto fotoeléctrico).^(REF. 8)

La causa tanto de los cambios de temperatura como del transporte de cargas es el aumento promedio de la potencia láser.

iv) Daño óptico.

Una importante limitación a la eficiencia en la conversión no lineal máxima lo representa el daño óptico del cristal originado por la intensidad del láser incidente.

Cuatro son los tipos básicos de daño óptico:

- 1) Daño térmico simple en materiales fácilmente absorbentes.
- 2) Daño por calentamiento local producido por la absorción de impurezas (Ej. partículas metálicas submicroscópicas) o de defectos de volumen cristalinos (dislocaciones).
- 3) Daños superficiales debido a impurezas, grietas, rasguños u otras imperfecciones en la superficie del cristal.
- 4) Daño intrínseco de volumen en materiales transparentes producido por ionización multifotónica o avalancha, que finaliza en una ruptura o calentamiento del cristal. Este tipo de daño es usualmente acompañado por auto-enfoque.

Los umbrales para daño térmico simple en materiales uniformemente absorbentes están únicamente determinados por la elevación máxima permisible de temperatura antes que las deformaciones asociadas produzcan fracturas o fundido del material.

Densidades máximas típicas de energía son del orden de algunas decenas de joules por cm^2 , siendo generalmente mayores en materiales óxidos que en semiconductores. Por ejemplo, la intensidad de daño en safiro es cercana a los 20 GW/cm^2 para irradiación pulsada Q-conmutada; mientras que la intensidad de daño en silicio y germanio varía entre 50 y 100 MW/cm^2 para pulsos de 100 ns., alcanzando a lo sumo un valor máximo del orden de 1 GW/cm^2 para pulsos de 1 ns. Nótese del ejemplo anterior que una duración más corta del pulso eleva la intensidad umbral.

Otra característica importante de los umbrales para daño térmico simple es su disminución bajo la condición de acoplamiento de fase. Por ejemplo, en GSA el $LiIO_3$ muestra un daño

a 400 MW/cm^2 para pulsos de 10 ns . Cuando hay acoplamiento de fase el umbral disminuye a 30 MW/cm^2 para la onda fundamental y a 15 MW/cm^2 para el armónico.

Respecto al umbral para daños superficiales este puede aumentar hasta aproximarse en muchos casos al umbral de volumen mediante la limpieza, pulido y recubrimiento de la superficie. En una serie de estudios Amman midió el umbral de daño en superficies de LiNbO_3 con distintos recubrimientos de un cuarto de longitud de onda. Encontrando que el LiNbO_3 no recubierto se dañaba a 40 MW/cm^2 al irradiarlo con pulsos de 140 ns y $1.08 \mu\text{m}$ de longitud de onda provenientes de un láser Q-conmutado de 5 W y 4 KHz . El umbral de daño se incrementa a 150 MW/cm^2 al recubrir la superficie del cristal con una película de Al_2O_3 de un cuarto de longitud de onda. Además, se ha encontrado que los daños ocurren con mayor facilidad en rasguños superficiales, ya que con el tiempo dichos rasguños son convertidos por la dispersión Brillouin estimulada en grietas donde el campo eléctrico se realiza grandemente, de ahí la importancia de la preparación superficial. ^[REF. 24]

El umbral para daño de volumen en materiales transparentes libres de inclusiones y de otros defectos resulta de la generación de un plasma caliente mediante ionización avalancha. Generalmente éste es el más importantes mecanismos para pulsos de picosegundo. Se ha establecido un modelo de ionización avalancha del daño óptico extrapolando a frecuencias ópticas la teoría de ruptura dieléctrica dc. Esta teoría ha mostrado que al parecer si ningún otro mecanismo de daño limita la intensidad láser a menores niveles, entonces la ruptura inducida láser es la que determina la intensidad incidente máxima. Afortunadamente la intensidad de daño para la mayoría de los materiales no lineales útiles cae entre 10 MW/cm^2 y 1 GW/cm^2 .

El daño óptico no es, en general, una limitante seria para aplicaciones no lineales cuando se utilizan como fuentes de bombeo láseres de estado sólido, ya que tanto el medio no lineal como el medio láser poseen umbrales de daño similares (no así cuando se utilizan medios láser líquidos o gaseosos).

Capítulo 5. DISPERSIONES RAMAN Y BRILLOUIN ESTIMULADAS.

Contenido.

1. Introducción.....	117
2. Procesos Raman y Brillouin.....	118
3. Cambios de frecuencia Stokes y anti-Stokes.....	119
4. Dispersiones óptica y acústica.....	120
5. Acoplamiento de vibraciones electromagnéticas y mecánicas.....	123
6. Tratamiento electromagnético de la dispersión Raman estimulada.....	123
6.1. Dispersión Stokes.....	123
6.2. Dispersión anti-Stokes.....	133
7. Dispersión Brillouin estimulada.....	126
7.1. Descripción Doppler de la dispersión de Brillouin.....	135
7.2. Tratamiento clásico de la dispersión de Brillouin.....	139
7.2.a. La ecuación de onda electromagnética.....	141
7.2.b. Dispersión Brillouin estimulada.....	142
7.2.c. Un ejemplo.....	145
8. Auto-enfoque de rayos ópticos.....	146
8.1. Mecanismos físicos productores de índice no lineal.....	149
8.2. Ecuaciones de auto-enfoque.....	153
9. Conjugación de fase.....	157
9.1. Mezclado degenerado de 4 ondas.....	158
9.2. Conjugación de fase por mezclado de 3 ondas.....	157
9.3. Observaciones experimentales de la conjugación de fase.....	168
10. Efecto electro-óptico cuadrático (Kerr).....	168

1. Introducción.

En el capítulo 3 se describieron fenómenos en los cuales se intercambian fotones entre dos o más rayos de luz satisfaciéndose relaciones simples de fase y de frecuencia. Las frecuencias armónicas y mezcladas generadas en estos procesos se determinan sólo por la composición de frecuencias de los rayos de luz aplicados.

Aunque indispensable para estos procesos, el medio no lineal juega sólo un papel de catalizador, seleccionando uno de los posibles procesos. Como en una dispersión lineal ordinaria, el medio responde coherentemente; pero de una manera pasiva, a la perturbación electromagnética. Los fotones colisionan elásticamente con los sistemas atómicos, esto es, ningún intercambio detectable de cuantos ocurre entre las ondas de luz y los sistemas dispersivos; de tal manera que las frecuencias generadas no son características del medio.

Cuando se satisfacen las estrictas condiciones de coherencia, un medio pasivo óptico podría actuar como un amplificador, facilitando el intercambio sostenido de energía entre los rayos de luz. Tal intercambio de energía, realizado con sistemas dispersores manejados coherentemente, está más cercanamente emparentado a la emisión estimulada que a la emisión espontánea.

Varias clases adicionales de fenómenos no lineales existen, en los cuales el medio óptico no es sólo un elemento pasivo; sino que impone sus propias frecuencias características a las de la luz incidente. Estos procesos también implican respuesta coherente a las perturbaciones electromagnéticas; pero en estos casos, la estructura interna de sus sistemas electrónicos dispersores es modificada periódicamente por vibraciones internas, típicamente mecánicas. Esto representa una variación periódica en la susceptibilidad producida por el campo electromagnético, la cual a su vez modula a la onda de luz. Una visión cuántica de estos procesos implica colisiones inelásticas de fotones con moléculas o conjuntos de moléculas.

La dispersión de la luz por este tipo de sistemas comprende: la dispersión producida por ciertas moléculas con modos vibracionales (dispersión Raman); luz dispersada por ondas acústicas (dispersión de Brillouin); dispersión por oscilaciones de plasmas y por sistemas spin-electrón orientado en cierto tipo de sólidos. Todos ellos corresponden a procesos espontáneos, desde un punto de vista mecánico cuántico.

El interés de la óptica no lineal se extiende más allá de los fenómenos espontáneos. También abarca los procesos de dispersión estimulados caracterizados por una modulación de la susceptibilidad óptica, y por una excitación y amplificación de las vibraciones ópticas y acústicas, al exceder el campo electromagnético óptico incidente una intensidad umbral.

Los procesos de dispersión estimulada requieren para su total desarrollo de rayos intensos y coherentes. Satisfechas estas condiciones es posible generar para cada proceso espontáneo su correspondiente proceso estimulado. Así se tiene:

- 1) Dispersión Raman estimulada.
- 2) Dispersión Brillouin estimulada.
- 3) Dispersión Rayleigh estimulada (formalmente este proceso es el mismo que la dispersión Raman estimulada desde un nivel rotacional molecular).
- 4) Dispersión estimulada por oscilaciones de plasma dadas a alta temperatura (dispersión Compton estimulada).

En este capítulo se estudiarán los efectos Raman y Brillouin estimulados como representativos de los procesos de dispersión estimulados, discutiéndose brevemente los efectos de autoenfoco, conjugación de fase y efecto Kerr.

2. Procesos Raman y Brillouin.

La dispersión Raman y Brillouin son fundamentalmente similares. Ellos ocurren cuando una propiedad no lineal del medio óptico acopla una variable mecánica (distancia interatómica en una molécula, densidad en un sólido o líquido homogéneo) con la polarización eléctrica asociada a la onda electromagnética. En cada una el espectro de frecuencias de la onda electromagnética se modifica por el intercambio de energía con el medio, en el cual los fonones son emitidos o absorbidos.

En analogía con los fotones en ondas electromagnéticas, el término fonón se utiliza para denotar los cuantos de energía de las vibraciones moleculares a frecuencia ω_v del medio. Un fonón, al igual que un fotón, tiene aspectos de partícula, se le asocia cierta energía $h\omega_v$ tanto como un momento $p = (h\omega_v/c) \hat{v} = \hbar k_v$, donde v es la velocidad de propagación del modo vibracional. Por lo tanto, las interacciones entre fotones y fonones pueden ser tratadas como colisiones entre 2 partículas en las cuales la conservación de energía y momento se mantienen.

Aunque similares, ambos procesos de dispersión también presentan diferencias. Por ejemplo, el fenómeno Raman involucra estados vibracionales (internos) de las moléculas; mientras la dispersión de Brillouin está asociada con variaciones de densidad del medio (densidad que puede considerarse en este proceso sin ninguna otra estructura interna). Expresándolo en un lenguaje más sofisticado, los procesos Raman involucran las ramas ópticas y los procesos Brillouin las ramas acústicas de la relación de dispersión mecánica. Lo anterior se explica en la siguiente sección.

Las distinciones prácticas son más significativas. Los procesos Raman producen luz y los procesos Brillouin producen luz y sonido. La dispersión Raman genera nuevas frecuencias con cambios de magnitud agudamente definidos, comparables con las frecuencias ópticas; la dispersión de Brillouin cambia las frecuencias de la luz dispersada mientras genera vibraciones ultrasónicas de frecuencias dependientes de la dirección de dispersión.

Existe otra diferencia importante entre las interacciones Raman y Brillouin: En la primera, al ocurrir el disturbio mecánico dentro de las moléculas individuales, usualmente de un líquido o de un gas (lo que podría evitar un acoplamiento con sus vecinas), la excitación no se propaga en el medio como una onda coherente; pero podría ser transferida a otras moléculas por colisiones. Para una propagación de onda se necesitan interacciones entre las moléculas. Las interacciones pueden ser colisiones moleculares elásticas azarosas, tal como las que explican la propagación de sonido en gases. Por lo tanto, en la dispersión de Brillouin el disturbio mecánico sí puede propagarse, aun en fluidos, como una onda bien definida.

Estas últimas distinciones también sugieren como regla, considerar a los desplazamientos de frecuencia en la dispersión Raman mucho mayores que los desplazamientos típicos de la dispersión de Brillouin. Las líneas espectrales desplazadas Raman son fácilmente resueltas con un equipo espectroscópico simple; las líneas cambiadas-Brillouin requieren de un interferómetro para separarlas de la línea central.

3. Cambios de frecuencia Stokes y Anti-Stokes.

En ambos fenómenos Raman y Brillouin, la mezcla de oscilaciones mecánicas con un rayo de luz en un dieléctrico no lineal pueden crear tanto cambios ascendentes como descendentes de frecuencia. Los últimos, obedientes de la ley de Stokes, son llamados cambios Stokes. Ocurren cuando un fonón de frecuencia ω_p es creado en el medio, proporcionando su energía un fotón ω_l del rayo de luz incidente. Como consecuencia de esta pérdida de energía un fotón de menor frecuencia $\omega_s = \omega_l - \omega_p$ debe aparecer en la luz dispersada.

Para un proceso de cambio ascendente o Anti-Stokes, un fonón ω_p en el medio debe unirse con un fotón primario ω_l para producir un nuevo fotón de mayor energía, y por consiguiente, de mayor frecuencia $\omega_{AS} = \omega_l + \omega_p$.

Las leyes de la conservación de la energía y del momento se aplican a ambos procesos. Utilizadas en capítulos anteriores, dichas relaciones son igualmente importantes en las interacciones de luz y ondas mecánicas. Ellas conectan los requisitos clásicos de coherencia (conservación de fase y de frecuencia) entre los distintos campos ondulatorios interactuantes con los requisitos de conservación para interacciones entre fotones y fonones.

La relación de ω como función de k para cada onda es conocida como relación de dispersión.

En la figura (1) se ilustran los dos procesos de cambio de frecuencia para dispersión Raman. En la figura (1.a) la molécula está inicialmente en el estado base, $v=0$. Un fotón incidente a ω_l

se absorbe mientras, simultáneamente, un fotón Stokes a $\omega_s = \omega_l - \omega_v$ se emite. Para conservar la energía la molécula se excita a un nivel vibracional $v=1$ de energía $h\omega_v$. Si; por otro lado, la molécula está inicialmente en un estado excitado ($v=1$) como se muestra en la Fig.(1.b), el fotón anti-Stokes dispersado es de frecuencia $\omega_{AS} = \omega_l + \omega_v$. Puesto que la emisión anti-Stokes depende de que la molécula esté inicialmente excitada, su intensidad comparada con la emisión Stokes es menor por un factor $e^{-h\omega_v/kT}$ de acuerdo con la ecuación de Boltzmann. El proceso inverso en el cual un fotón Stokes se absorbe es mostrado en la figura (1.c).

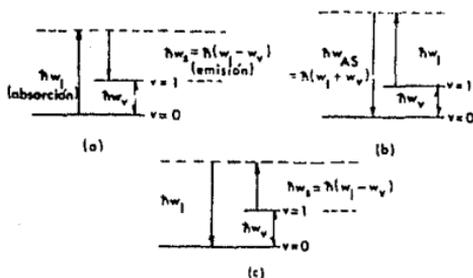


FIG. 1. (a) UNA DISPERSION STOKES EN LA CUAL UN FOTON LASER A ω_l ES ABSORBIDO MIENTRAS UN FOTON STOKES ($\omega_l - \omega_v$) SE CREA JUNTO CON UN CUANTO VIBRACIONAL ($v=1$). (b) UNA DISPERSION ANTI-STOKES EN LA CUAL UN FOTON LASER A ω_l Y UN CUANTO VIBRACIONAL (ω_v) SON ABSORBIDOS, MIENTRAS UN FOTON A $\omega_l + \omega_v$ SE CREA. (c) UN PROCESO EN EL CUAL LA PRESENCIA DE RADIACION LASER A ω_l ESTIMULA LA ABSORCION DE FOTONES STOKES A $\omega_l - \omega_v$, QUE ES EL PROCESO INVERSO DE (a).

4. Dispersión óptica y acústica.

Es instructivo contrastar las características generales de las relaciones de dispersión para ondas de luz (figura 2) con aquellas para ondas de sonido (figura 3 y 4). La Fig.(2) se dibuja para luz en un dieléctrico isotrópico hipotético con una sola frecuencia natural ω_0 en el ultravioleta. La pendiente de esta curva es la velocidad de la señal de un grupo o paquete de ondas de luz con frecuencias centradas en el punto de evaluación,

la pendiente de una línea desde el origen a este punto es la velocidad de fase, c/n. Es una curva continua excepto en la región de dispersión anómala centrada en ω_0 .

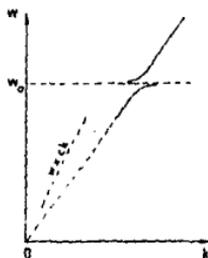


FIG. 2. RELACION DE DISPERSION PARA LUZ EN UN MEDIO TRANSPARENTE CON UNA SOLA FRECUENCIA NATURAL ω_0 .

La figura (3) se dibuja para una onda de sonido en un líquido hipotético conteniendo moléculas diatómicas que poseen un solo modo de vibración mecánica interno; por ejemplo, como lo sería una oscilación de frecuencia ω_0 a lo largo de la línea que une los centros de las moléculas.

Hay dos "ramas", una para sonido, o disturbios acústicos; y la otra para vibraciones interatómicas. La última está representada, recordando que disturbios no propagantes tienen velocidad de grupo cero, por una línea horizontal a la altura ω_0 .

La importancia de k está aquí representada en las diferentes relaciones de fase que podrían existir si las oscilaciones independientes fueran excitadas de una manera coherente. Ondas de sonido ordinarias de un rango menor de frecuencia, propagándose a una velocidad $v_s(\omega)$, están representadas por la curva más baja; parecida a la curva de dispersión electromagnética (Fig.2) excepto por $v_s \ll c$.

Frecuencias tan altas que su longitud de onda puede aproximarse a las dimensiones moleculares son, por supuesto, excluidas de la rama acústica, la cual conduce a ondas de presión densidad.

La figura (4) se dibuja para un "sólido unidimensional" abarcando una cadena de longitud infinita de átomos ligeros y pesados, cada uno acoplado por un enlace o resorte elástico a su más cercano vecino.

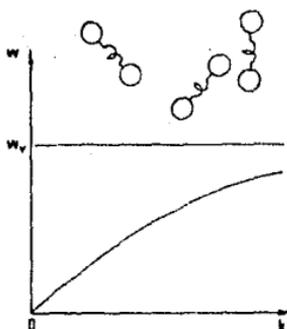


FIG. 3. RELACION DE DISPERSION PARA UN GAS HIPOTETICO COMPUESTO DE MOLECULAS DIATOMICAS CON UNA SOLA FRECUENCIA DE VIBRACION, DESPRECIANDO LA ROTACION INERCIAL. SE MUESTRA UNA "rama" ACUSTICA (INFERIOR) Y UNA "rama" OPTICA (SUPERIOR).

Debido al acoplamiento de cadena las vibraciones interatómicas pueden propagarse. Puesto que los elementos menos masivos involucran fuerzas de amarre más tensas y longitudes de onda más cortas; las vibraciones interatómicas podrán propagarse con una velocidad de fase mucho mayor que la de las ondas acústicas.

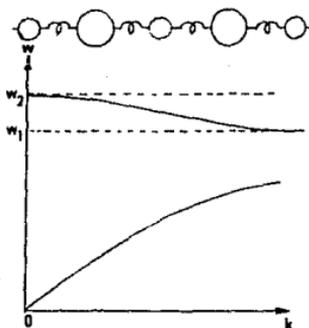


FIG. 4. LA RELACION DE DISPERSION PARA UNA MOLECULA LINEAL EXTENDIDA INFINITAMENTE, COMPUESTA DE MASAS DESIGUALES ALTERNANTES ACOPLADAS ELASTICAMENTE, MOSTRANDO UNA RAMA ACUSTICA (INFERIOR) Y UNA RAMA OPTICA CON DOS FRECUENCIAS LIMITANTES.

Sus frecuencias pueden compararse con las frecuencias ópticas, y la relación de dispersión aplicable es la curva superior, la cual se aproxima asintóticamente a ω_2 para k pequeña, y a ω_1 para k grande. La primera de estas frecuencias limitante corresponde al movimiento de las masas más pequeñas manteniendo las más grandes fijas; la segunda de las frecuencias corresponde al caso opuesto. Extendiéndose a sólidos reales, los cuales pueden soportar tanto ondas transversales como longitudinales, o aun en líquidos homogéneos con moléculas complejas, las relaciones de dispersión mecánicas llegan a ser muy complicadas, y no necesarias de considerar en detalle.

En un proceso de dispersión Brillouin estaremos interesados en la rama inferior o "acústica", y en un proceso Raman serán las ramas superiores o "ópticas" las involucradas.

5. Acoplamiento de vibraciones electromagnéticas y mecánicas.

Los mecanismos por medio de los cuales las oscilaciones mecánicas pueden ser excitadas por la radiación electromagnética son diferentes para los dos tipos de procesos de dispersión.

En la dispersión de Brillouin, donde las cantidades relevantes son variables macroscópicas (densidad y susceptibilidad eléctrica), cuando un campo eléctrico oscilante incide en el medio, se crea una deformación (o variación) periódica de la densidad o electrorestricción. La electrorestricción, a su vez, proporciona un mecanismo a través del cual la polarización electrónica genera variaciones de presión, lo que finalmente permite a la luz bombear ondas de sonido.

En los procesos Raman espontáneos y estimulados el interés se centra en las variables microscópicas, como puede verse de las causas que los originan. Ambos se producen por alteraciones en la polarizabilidad electrónica inducidas por cambios en la distancia interatómica dentro de la molécula; existiendo en el efecto estimulado un proceso adicional de amplificación, semejante al que ocurre en un láser.

Es, por lo tanto, suficiente la teoría clásica para la descripción de la dispersión de Brillouin estimulada.

Respecto al efecto Raman; aunque un análisis riguroso de este proceso requiere de consideraciones mecánico-cuánticas (por ejemplo, para la determinación de la susceptibilidad Raman), es posible describirlo cuantitativamente utilizando un conjunto de ecuaciones similares a las empleadas en el capítulo 3 para la explicación de las interacciones de 3 ondas; con la excepción de que una de ellas describirá ahora una oscilación molecular y no una propagación de onda.

6. Tratamiento electromagnético de la dispersión Raman estimulada.

6.1. Dispersión Stokes.

La emisión Raman estimulada fue descubierta por Woodbury et

al, cuando un rayo láser de rubí de suficiente intensidad se hizo incidir en una celda conteniendo nitrobenzeno colocado dentro de un resonador.

En el efecto Raman un fotón de luz incidente ω_i es absorbido por una molécula y reemitido a una menor frecuencia ω_s . La energía removida del rayo de luz aparece como energía mecánica de vibración o de rotación de la molécula. La nueva característica sorprendente del efecto Raman-Wooldbury es que si suficientes fotones son emitidos en el efecto Raman ordinario, evitándose la fuga demasiado rápida de éstos (reflejándolos dentro del resonador), dichos fotones inician una emisión Raman adicional (ver diagrama inferior en la siguiente figura).

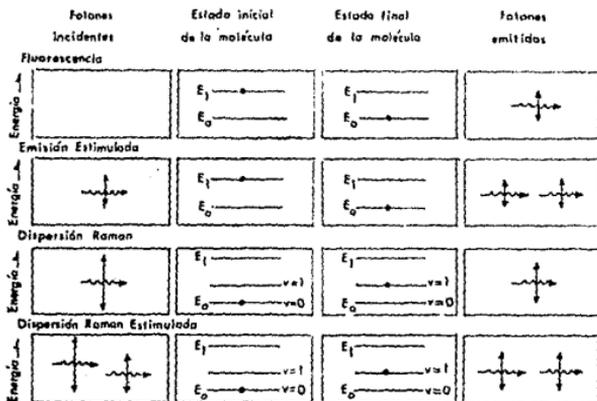


FIG. 5. PROCESOS DE RADIACION IMPLICANDO TRANSICIONES ENTRE DOS ESTADOS EXCITADOS DE UNA MOLECULA A UN ATOMO. EN FLUORESCENCIA UN FOTON ES ESPONTANEAMENTE EMITIDO CON ENERGIA EQUIVALENTE A LA PERDIDA POR LA MOLECULA. EN EMISION ESTIMULADA SE EMITE OTRO FOTON DE ENERGIA SEMEJANTE. BAJO LA PRESENCIA DE MUCHAS MOLECULAS EXCITADAS UNA REACCION EN CADENA, O ACCION LASER PUEDE OCURRIR. EN DISPERSION RAMAN UNA MOLECULA EN UN ESTADO DESEXCITADO ABSORBE UN FOTON DE ENERGIA Y REEMITE DESPUES DE SUSTRAR LA ENERGIA NECESARIA PARA LA EXCITACION. EN DISPERSION RAMAN ESTIMULADA LA PRODUCCION DE UN FOTON DISPERSADO SE ESTIMULA POR LA PRESENCIA DE UN FOTON DE IGUAL ENERGIA. CONSECUENTEMENTE UNA INTERACCION EN CADENA OCURRE.

Esta estimulación es similar al proceso a través del cual la luz se amplifica en un láser, excepto que la excitación de las moléculas es innecesaria. En la reacción en cadena que sigue, una gran fracción de la luz láser incidente es convertida en luz Raman de menor frecuencia. Con el efecto Raman estimulado es posible fotografiar un espectro Raman con un solo pulso de luz láser de una diezmillonésima de segundo; por técnicas convencionales la exposición requeriría de un minuto a una hora.

Quando pulsos de luz láser se enfocan en sólidos, líquidos y gases a alta presión, el proceso Raman estimulado puede ocurrir aun sin la cavidad. Cerca del foco donde la intensidad de la luz puede exceder 10^7 watts por centímetro cuadrado, la amplificación de luz Raman es tan alta como 10^{50} por centímetro, suficiente para amplificar luz extraviada de fondo hasta un nivel de 10^3 watts en un solo paso a través del foco.

Otra característica del uso de rayos enfocados es que la vibración molecular estimulada por efecto Raman llega a ser tan violenta que el índice de refracción del material oscila fuertemente a la frecuencia de vibración molecular.

Resumiendo, la dispersión estimulada difiere de la dispersión Raman ordinaria en los siguientes aspectos:

- 1) Ocurre solo cuando el rayo excitante rebasa una intensidad umbral.
- 2) El rayo Stokes tiene propiedades de direccionalidad similares a las del rayo excitante.
- 3) La salida es altamente monocromática, especialmente cuando el rayo láser incidente consiste de una sola frecuencia.
- 4) La eficiencia en la conversión de la frecuencia láser ω_l a la frecuencia Stokes ω_s es muy grande, con valores de aproximadamente 10-20 por ciento obtenidos con entradas láser lo suficientemente grandes.

En los experimentos de emisión Raman estimulada la luz dispersada consiste, simultáneamente, de un número apreciable de frecuencias Stokes a $(\omega_l - \omega_v)$, $(\omega_l - 2\omega_v)$, ..., y de frecuencias anti-Stokes a $(\omega_l + \omega_v)$, $(\omega_l + 2\omega_v)$, Para entender el origen de estas frecuencias nos referimos a la figura (1).

El proceso de emisión Stokes se muestra en la figura (1.a) produciendo un aumento en la población del nivel vibracional $v=1$. Una vez que esto sucede la radiación a $\omega_{AS} = \omega_l + \omega_v$ puede emitirse como se muestra en la figura (1.b). Los campos Stokes (ω_s) y anti-Stokes (ω_{AS}) pueden, a continuación, actuar como radiación de entrada generándose así $\omega_s - \omega_v = \omega_l - 2\omega_v$ y $\omega_{AS} + \omega_v = \omega_l + 2\omega_v$, respectivamente, etc.

Una solución completa de este problema no es factible ya que

requiere una solución simultánea de las ecuaciones de Maxwell y la ecuación de vibración representativas de todas las frecuencias componentes de interés.

Para ilustrar los principios básicos involucrados en la dispersión Raman aprovechamos el hecho de que sólo la radiación Stokes ($\omega_1 - \omega_v$) pueden amplificarse inicialmente.

El crecimiento de todas las otras frecuencias componentes depende de la presencia de las moléculas en el estado $v=1$, como en la generación de componentes anti-Stokes; o de la presencia de radiación Stokes de primer orden, la cual es necesaria para generar radiación Stokes de segundo orden. Podemos consecuentemente derivar la condición para ganancia neta; u oscilación, a la primera frecuencia Stokes, $\omega_1 - \omega_v$, despreciando todas las frecuencias componentes excepto, por supuesto, el campo láser a ω_1 .

Basados en un sistema de unidades MKS; el modelo usado en el análisis es como sigue:

El medio Raman se considera compuesto de N osciladores armónicos por unidad de volumen, representando cada oscilador una molécula. Los osciladores son "independientes" unos de otros, por lo tanto, el conjunto de osciladores no puede soportar un movimiento de onda con velocidad de grupo no nula. Cada oscilador se caracteriza por su posición z (el análisis es unidimensional tal que $\partial/\partial x = \partial/\partial y = 0$) y por la coordenada vibracional $X(z,t)$ de la molécula. La ecuación de movimiento para un solo oscilador es entonces:

$$\frac{d^2 X(z,t)}{dt^2} + \gamma \frac{dX}{dt} + \omega_v^2 X = \frac{F(z,t)}{m} \quad (1)$$

donde γ es la constante de amortiguamiento escogida para que la anchura de línea de la dispersión Raman espontánea sea $\Delta\nu = \gamma/2\pi$; ω_v es la frecuencia de resonancia (no amortiguada); m es la masa y $F(z,t)$ es la fuerza impulsora.

El término impulsor puede derivarse considerando la energía electromagnética bajo la presencia de las moléculas. La densidad de energía almacenada electrostática es:

$$w_e = \frac{1}{2} \epsilon E^2$$

Considerando

$$\epsilon = \epsilon_0 (1 + Na) = \epsilon_0 \left\{ 1 + N \left[\alpha_0 + \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 X \right] \right\} \quad (2)$$

En la relación (2) es precisamente la dependencia de la polarizabilidad molecular α de la coordenada vibracional interna X la que hace del medio un medio Raman activo. El factor $\left[\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right]_0$ recibe el nombre de polarizabilidad diferencial.

Utilizando la relación (2) es posible escribir w_e como:

$$w_e = \frac{1}{2} \epsilon_0 \left\{ 1 + N \left[\alpha_0 + \left[\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right]_0 X \right] \right\} E^2 \quad (3)$$

La fuerza por unidad de volumen del material polarizable es $\frac{\partial w_e}{\partial X}$; a partir de ella, después de dividir por N obtenemos la fuerza por oscilador $F(z, t)$.

$$F(z, t) = \frac{1}{2} \epsilon_0 \left[\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right]_0 \overline{E^2}(z, t) \quad (4)$$

La barra indica un promedio sobre algunos períodos ópticos debido a que la molécula no puede responder a frecuencias ópticas. La expresión anterior muestra que una polarizabilidad diferencial no nula permite al campo eléctrico impulsar a la vibración molecular.

El siguiente problema es mostrar como la excitación inducida por el campo de la vibración molecular $X(z, t)$ reacciona a su vez sobre los campos electromagnéticos.

La vibración a ω_v produce, de acuerdo con la relación (2); una modulación de la constante dieléctrica ϵ a ω_v . Esto conduce a una modulación de fase de cualquier campo de radiación presente creando así bandas laterales separadas por ω_v . Dicho en otras palabras; una modulación de ϵ a ω_v , producida por vibraciones moleculares, puede conducir a un intercambio de energía entre los campos electromagnéticos separados en frecuencia por múltiplos de ω_v , tal como, por ejemplo, entre los campos láser (ω_1) y Stokes (ω_2).

Tomando el campo total como la suma de los campos Stokes (ω_1) y el campo láser (ω_2).

$$E(z, t) = A_1(z) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + A_2 e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + c.c. \quad (5)$$

$$\text{tal que } \overline{E^2}(z, t) = A_2 A_1^M(z) e^{i(\omega_1 - \omega_2)t - (k_1 - k_2)z} + c.c. \quad (6)$$

Sustituyendo (6) en (4) y de ahí en la ecuación molecular de movimiento (1) se obtiene:

$$(\omega_v^2 - \omega^2 + i\omega\gamma) X(z) e^{i\omega t} = \frac{\epsilon_0}{2m} \left[\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right]_0 A_2 A_1^M e^{i(\omega_1 - \omega_2)t - (k_1 - k_2)z} \quad (7)$$

$$\text{Donde } X(z, t) = X(z) e^{i\omega t} + c.c. \quad (8)$$

Se sigue de (7) que la vibración molecular es impulsada a una

frecuencia $\omega = \omega_2 - \omega_1$; con una amplitud compleja.

La ecuación

$$X(z) = \frac{\epsilon_0 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 A_2(z) A_1^*(z)}{2m \left[\omega_v^2 - (\omega_2 - \omega_1)^2 + i(\omega_2 - \omega_1)\gamma \right]} e^{-i(k_2 - k_1)z} \quad (9)$$

La polarización inducida en las moléculas para el campo a ω_1 es

$$P = \epsilon_0 N \alpha(z, t) E(z, t) = \epsilon_0 N \left[\alpha_0 + \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 X(z, t) \right] E(z, t) \quad (10)$$

Nuestro interés se centra en el término de polarización no lineal proporcional al producto $X E$. Usando (5) en la ecuación (10) la polarización no lineal llega a ser:

$$P_{NL}(z, t) = \epsilon_0 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 \times \left\{ \frac{\epsilon_0 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 A_2(z) A_1^*(z) e^{i(\omega_1 - \omega_2)t - i(k_1 - k_2)z}}{2m \left[\omega_v^2 - (\omega_2 - \omega_1)^2 + i(\omega_2 - \omega_1)\gamma \right]} + c.c. \right\} \times$$

$$A_1(z) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + A_2 e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + c.c. \quad (11)$$

Si multiplicamos los dos términos en la ecuación (11) obtenemos polarizaciones oscilantes a ω_1 , ω_2 , $2\omega_1 - \omega_2$ y $2\omega_2 - \omega_1$.

Concentrémonos primero en el término ω_1

$$P_{NL}^{(\omega_1)}(z, t) = P_{NL}^{(\omega_1)}(z) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c.c. \quad (12)$$

$$\text{Donde } P_{NL}^{(\omega_1)}(z) = \frac{\epsilon_0^2 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0^2 |A_2|^2}{2m \left[\omega_v^2 - (\omega_2 - \omega_1)^2 + i(\omega_2 - \omega_1)\gamma \right]} A_1(z) \quad (13)$$

El coeficiente que relaciona a la polarización inducida con el campo inducido es la susceptibilidad. De (13) podemos definir una susceptibilidad no lineal Raman compleja a través de la relación:

$$P_{NL}^{(\omega_1)}(z) = \epsilon_0 \chi_{RAMAN}^{(\omega_1)} |A_2(z)|^2 A_1(z) \quad (14)$$

$$\text{Luego } \chi_{RAMAN}^{(\omega_1)} = \frac{\epsilon_0 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0^2}{2m \left[\omega_v^2 - (\omega_2 - \omega_1)^2 + i(\omega_2 - \omega_1)\gamma \right]} \quad (15)$$

De manera más general podemos caracterizar el efecto de vibración molecular inducido por medio de un tensor de cuarto rango.

$$P_i(\omega_i = \omega_j - \omega_k + \omega_l) = \chi_{ijkl}(-\omega_j, \omega_l, -\omega_k, \omega_l) \times A_j(\omega_j) A_k^*(\omega_k) A_l(\omega_l) \quad (16)$$

Siendo la ecuación (14) un caso especial de (16) donde $\omega_j = \omega_k = \omega_2$, $\omega_l = \omega_1 = \omega_1$.

Regresando a la ecuación (15) definimos:

$$\chi_{\text{RAMAN}}(\omega_1) = \chi'_{\text{RAMAN}}(\omega_1) - i \chi''_{\text{RAMAN}}(\omega_1) \quad (17)$$

Donde

$$\chi'_{\text{RAMAN}}(\omega_1) = \frac{\epsilon_0 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)^2 \left[\omega_v - (\omega_2 - \omega_1) \right] H}{4m\omega_v \left\{ \left[\omega_v - (\omega_2 - \omega_1) \right]^2 + \gamma^2 \cdot 4 \right\}} \quad (18)$$

$$\chi''_{\text{RAMAN}}(\omega_1) = \frac{-\epsilon_0 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)^2 (\gamma \cdot 2) H}{4m\omega_v \left\{ \left[\omega_v - (\omega_2 - \omega_1) \right]^2 + \gamma^2 \cdot 4 \right\}} \quad (19)$$

Donde la aproximación se aplica a un caso de alta Q en $\omega_v \ll \omega_v$, el cual usualmente ocurre (típica $\gamma \ll 10^{-2} \omega_v$). La susceptibilidad Raman no lineal es usualmente Lorentziana tal como su contraparte lineal χ'' . Conocida la polarización inducida a ω_1 es posible expresar la ecuación de onda de la amplitud a esta frecuencia, bajo las condiciones de resonancia ($\omega_2 - \omega_1 = \omega_v$) y de transparencia del medio a ω_1 (i.e., sin absorción a ω_1):

$$\frac{d}{dz} A_1(z) = -i \frac{\mu_0 \omega_1^2}{k_1} P_{NL1}(\omega_1)$$

$$\frac{d}{dz} A_1(z) = -i \left[\frac{k_1}{\epsilon_1} \right] \epsilon_0 \left[-i \chi''_{\text{RAMAN}} \right] |A_2(z)|^2 A_1(z)$$

$$\frac{d}{dz} A_1(z) = k_1 \left[\frac{\epsilon_0}{\epsilon_1} \right] \left[-\chi'_{\text{RAMAN}}(\omega_1) \right] |A_2(z)|^2 A_1(z) \quad (20)$$

Una ecuación similar existe para A_2 bajo las mismas condiciones.

$$\frac{d}{dz} A_2(z) = -k_2 \left[\frac{\epsilon_0}{\epsilon_2} \right] \left[\frac{\omega_2}{\omega_1} \right] \left[-\chi'_{\text{RAMAN}}(\omega_2) \right] |A_1(z)|^2 A_2(z) \quad (21)$$

Para encontrar la amplitud de la onda Stokes $A_1(z)$ en un proceso Raman estimulado, simplifiquemos primero el problema suponiendo $A_2(z)$ constante. Esto implica que la energía drenada del campo ω_2 (láser) por interacciones no lineales es pequeña comparada con la energía almacenada a ω_2 . Esta suposición permite tratar solo con la ecuación (20), obteniéndose una solución exponencial de A_1 .

$$A_1(z) = A_1(0) e^{gz} \quad (22)$$

con

$$g = \frac{k_1 \left[\frac{\epsilon_0^2}{\epsilon} \right] N \left[\frac{\partial \chi}{\partial X} \right]^2 \gamma |A_2|^2}{8\pi \omega_1 \left\{ \left[\omega_2 - (\omega_2 - \omega_1) \right]^2 + \frac{\gamma^2}{4} \right\}} \quad (23)$$

La ecuación (22) muestra que bajo la presencia de un campo de radiación láser a ω_2 una señal a ω_1 es amplificada exponencialmente con un factor de ganancia por unidad de longitud $g > 0$ proporcional al cuadrado de la amplitud A_2 .

Considérese un medio Raman activo contenido dentro de un recipiente óptico de longitud L el cual posee una reflectividad efectiva R para radiación Stokes. Bajo la presencia de un campo láser el campo Stokes se amplificará exponencialmente con un factor de ganancia dado por (23). Si la ganancia es suficiente para compensar las pérdidas en un viaje redondo; una oscilación a ω_1 puede resultar.

La condición necesaria es, por lo tanto:

$$R e^{g^2 L} = 1$$

Usando (23) obtenemos la intensidad umbral:

$$(I_2)_{\text{umbral}} = \frac{\left[\frac{\epsilon_0^2}{\epsilon} \right] \left[-\frac{1}{L} \ln R \right]}{2k_1 \left[-\chi'_{\text{RAMAN}}(\omega_1) \right]}$$

Usando como medio Raman CS_2 dentro de un recipiente con $L=5$ cm y $R \approx 10^{-3}$ se obtiene:

$$(I_2)_{\text{umbral}} = 0.7 \text{ MW/cm}^2$$

La oscilación Raman se usa en la práctica para convertir la salida de algunos láseres pulsados comunes (e.g., Nd^{3+} vídrio a $1.06 \mu\text{m}$) en una salida coherente con frecuencias cambiadas con un

valor ω_v .

En experimento Raman reales se observa que el rayo láser incidente dentro de líquidos Raman es enfocado y "atrapado" en la forma de un filamento delgado con un diámetro de algunas micras. Este "atrapamiento" se debe a la dependencia de índice de refracción del medio del cuadrado de la amplitud del campo eléctrico (efecto electroestrictivo o Kerr) el cual, acoplado con un perfil gaussiano del rayo inicial, origina una reducción del diámetro del rayo. Este efecto produce un campo eléctrico muy grande E_z y de acuerdo con (23) una ganancia muy grande a la frecuencia Stokes-Raman. Esta ganancia es lo suficientemente grande para que la emisión Raman estimulada sea atribuida a la amplificación en un "solo paso" de la radiación espontánea. El pico de la emisión Raman ocurre a la frecuencia donde la ganancia Raman tiene un máximo. Usando (23) se obtiene:

$$\omega_1 = \omega_2 - \omega_v + \frac{\gamma^2}{4\omega_v}$$

para la frecuencia de emisión Stokes: Produciendo la presencia de la relajación molecular a una razón γ y un ligero cambio del valor ideal $\omega_1 = \omega_2 - \omega_v$.

De acuerdo con la ecuación (9) concluimos que un aumento de la oscilación a $\omega_1 = \omega_2 - \omega_v$ estará acompañado por un aumento de la oscilación molecular a $\omega_v = \omega_2 - \omega_1$ (despreciando el pequeño cambio de frecuencia $\gamma/4\omega_v$ discutido antes) la cual se degrada rápidamente en calor elevando perceptiblemente la temperatura de la celda. Según el modelo clásico, esta pérdida de energía se gasta para vencer la fuerza de amortiguamiento en el oscilador molecular impulsado en forma resonante.

Usando (8), (9) y el resultado auxiliar $\omega_2 - \omega_1 = \omega_v = \omega$; se obtiene la solución para la coordenada normal vibracional:

$$\chi(z, t) = \frac{-i\epsilon_0 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0}{2m\omega_v \gamma} A_2 A_1^* e^{i(\omega_v t - (k_2 - k_1)z)} + c. c. \quad (24)$$

La fase de la oscilación molecular es, por lo tanto, $(k_2 - k_1)z$. Esta fase no se debe a la propagación de onda a ω_v ; sino refleja el hecho de que la oscilación molecular es impulsada por el producto de los campos eléctricos con frecuencias ω_2 y ω_1 y, consecuentemente, adapta su propia fase a la del producto de los campos impulsores $A_2 A_1^* e^{i(\omega_v t - (k_2 - k_1)z)}$. Este modo de vibración, en el cual la constante de propagación k no es una función de la frecuencia sino que toma valores arbitrarios, es consecuencia de la conducta de la rama fonónica "óptica" cerca de $k=0$ (ver figura 4) donde $d\omega/dk=0$. Esto también explica el porque las condiciones de "acoplamiento de índice" que deben ser satisfechas en interacciones paramétricas se cumple automáticamente en emisión Raman estimulada.

Existen muchos medios Raman activos. Compuestos de anillo orgánico (e.g., benceno, naftalina, tolueno, ciclohexeno, bromonaftalina) son particularmente activos. Los cambios Raman activos son usualmente expresados como cambios en el recíproco de la longitud de onda en unidades de cm^{-1} .

Una lista con las frecuencias vibracionales y anchuras de líneas natural de diferentes materiales Raman se dan en la siguiente tabla.

TABLA. 1. ALGUNOS MATERIALES RAMAN, SUS FRECUENCIAS VIBRACIONALES, Y LA ANCHURA DE LINEA NATURAL $\Delta\nu$.

SUSTANCIA	FRECUENCIA VIBRACIONAL cm^{-1}	$\Delta\nu/\text{cm}^{-1}$
LIQUIDO		
CCl_4	459 ($\lambda=21.79 \mu\text{m}$)	≈ 5
Cloroformo	668 ($\lambda=14.97 \mu\text{m}$)	≈ 6
Benceno	992 ($\lambda=10.05 \mu\text{m}$)	1.8
Nitrobenceno	1345	6.3
GAS		
Metano (CH_4)	2914	
H_2	4160	
Deuterio	2993	
SOLIDO		
LiNbO_3	256	23
	258	7
	637	20
SiO_2	467	
	calcuta	1087
Naftalina	1384	

Tablas con un número mayor de sustancias Raman junto con sus frecuencias vibracionales pueden encontrarse en Johnson, pp. 527 y 528 (Ref. 50) y en Yariv apéndice 4 (Ref. 93).

Además del efecto Raman vibracional, existen otros procesos que involucran reorientación molecular y transiciones electrónicas virtuales o reales las cuales también contribuyen a la señal radiada, estas señales de fondo no resonantes son muy independientes de $\omega_s - \omega_2 = \omega_v$ y se representan por otro término en $\chi^{(3)}$ denotado por $\chi_{ijkl}^{(3)pr}$. En algunos experimentos el nivel de fondo es interesante, en otros sólo despreciable.

El término Raman resonante interfiere constructiva y

destruictivamente con el fondo, produciendo una función forma de línea con máximos y mínimos (Refs. 47 y 55).

Por último cabe recordar que las ecuaciones (20) y (21) son estrictamente válidas solo para medios no dispersivos o para ondas verdaderamente monocromáticas (no físicas); al suponerse implícitamente para su obtención a partir de

$$\nabla^2 E - \mu_0 \epsilon \frac{\partial^2}{\partial t^2} E = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P_{NL}$$

que la permitividad ϵ no es una función de la longitud de onda. De cualquier manera, son una buena aproximación para la mayoría de los casos prácticos. Una derivación más elaborada deberá tomar en cuenta las anchuras de banda finitas de las ondas Stokes y de bombeo; sustituyéndose las velocidades de fase por las velocidades de grupo. Una derivación de este tipo puede consultarse en J. P. Furtanen and M. J. Shaw, "High-power forward Raman amplifiers employing low-pressure gases in light guides I. Theory and applications", Ref. 79; o desde un punto de vista cuántico en Yariv capítulo 18 (Ref. 94).

6.2. Dispersión Anti-Stokes.

En dispersión Raman espontánea el proceso de emisión anti-stokes a $\omega_{AS} = \omega_l + \omega_v$ depende, como se muestra en la figura (1.b), de que la molécula este excitada en el estado vibracional $v=1$. La probabilidad de este evento es, consecuentemente, menor por un factor $e^{-h\nu_v/kT}$ comparado con la dispersión Stokes. Siendo ω_v típicamente $\approx 1,000 \text{ cm}^{-1}$, y KT (a $T=300^\circ\text{K}$) $\approx 200 \text{ cm}^{-1}$; la dispersión Anti-Stokes espontánea será menor por tres o cuatro ordenes de magnitud comparada con la intensidad Stokes. Al tratar con la emisión Raman estimulada la situación es totalmente diferente. Se encontró en la última sección que un subproducto del evento es la excitación de acuerdo a (24), de la vibración molecular la cual acompaña la emisión Stokes. Cuánticamente, esto corresponde a un gran número de moléculas excitadas en el estado $v=1$, lo cual aumenta la probabilidad de la emisión anti-Stokes, descrita por la figura (1.b), a un nivel apreciable.

En los experimentos de dispersión Raman estimulada se observó que la emisión anti-Stokes intensa usualmente acompaña a la emisión Raman estimulada. También fue descubierto por Terhune que la radiación anti-Stokes se emite en la forma de una cáscara cónica cuyo eje es paralelo a la dirección de propagación láser. Para tratar el problema electromagnéticamente obtengamos la polarización inducida a $\omega_{AS} = \omega_s$ en el medio Raman debida a un campo eléctrico:

$$E(z, T) = A_1(z) e^{i\omega_1 t} + A_2(z) e^{i\omega_2 t} + A_3(z) e^{i\omega_3 t} + \text{c.c.} \quad (25)$$

Expresión en la cual se ha suprimido la dependencia espacial y se

ha tomado $\omega_3 - \omega_1 = \omega_2 - \omega_1$.

Primero derivemos el término producido al impulsar la vibración molecular mediante el producto $E_3 E_2^M$. Este término es análogo a la expresión (11) y se obtiene de una forma idéntica. Podemos así obtener la polarización modificando la ecuación (13) recordando que ahora E_3 es el campo de mayor frecuencia y E_2 el de menor. Reemplacemos, por lo tanto, E_2 por E_3 y E_1 por E_2 ; además de $\omega_2 - \omega_1$ por $\omega_3 - \omega_2$. El resultado es:

$$P_{NL}^{(\omega_3)}(z) = \frac{\epsilon^2 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 |A_2|^2}{2m \left[\omega_v^2 - (\omega_3 - \omega_2)^2 + i(\omega_3 - \omega_2)\gamma \right]} A_3(z) \quad (26)$$

La diferencia importante entre (26) y (13) es "el signo opuesto" del término imaginario. Esta diferencia se traduce en un signo opuesto de $\chi''(\omega_3)$ relativo a $\chi''(\omega_1)$.

$$\chi''_{\text{RAMAN}}(\omega_3) = \frac{\epsilon N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)_0 (\gamma/2)}{4m\omega_v \left\{ \left[\omega_v - (\omega_3 - \omega_2) \right]^2 + \gamma^2/4 \right\}} \quad (27)$$

Así que el factor de ganancia ejercido por la onda anti-Stokes (ω_3) es:

$$g(\omega_3) = -k_1 \left[\epsilon_1 \epsilon_2 \right] \chi''_{\text{RAMAN}}(\omega_3) |A_2|^2 < 0 \quad (28)$$

Y la onda se atenúa, llegándose a la conclusión de que la radiación anti-Stokes se atenúa al introducirla dentro de un medio Raman activo bajo la presencia de una onda ω_2 y en ausencia de radiación Stokes.

Existen, de cualquier manera, otra fuente de polarización a ω_3 ; obtenida al considerar el término:

$$P_{NL}^{(\omega_3)}(z) \propto A_2 A_1^M \exp(i(2\omega_2 - \omega_1)t) \quad (29)$$

de la ecuación (11). Este término no involucra E_3 y puede verse como la banda lateral superior $[\omega_2 + (\omega_2 - \omega_1)]$ debido a una modulación de la constante dieléctrica vista por ω_2 a la frecuencia molecular impulsada $(\omega_2 - \omega_1)$. Este término actúa como una fuente de radiación a ω_3 .

Si insertamos la dependencia espacial dentro de la polarización de (28) se encuentra que:

$$P_{NL}^{(\omega_3)}(z) \propto A_2 A_2 A_1^* \exp(-i(2\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}) \quad (29)$$

Este término generará un campo a ω_3 con una dependencia espacial $A_3 e^{-ik_3 \cdot r}$ tal que:

$$\vec{k}_3 = 2\vec{k}_2 - \vec{k}_1 \quad (29.b)$$

Por consiguiente la radiación anti-Stokes será emitida en cualquier dirección \vec{k}_3 que satisfaga (29.b). La dirección resultante, \vec{k}_3 , del rayo anti-Stokes emitido se muestra en la figura (6) (debe recordarse que en un medio isotrópico, las magnitudes de \vec{k}_1 , \vec{k}_2 y \vec{k}_3 se determinan por sus frecuencias respectivas y son $|\vec{k}_i| = \omega_i n_i / c$, donde n_i es el índice de refracción a ω_i especificado por la intersección del lugar geométrico de \vec{k}_1 con el de \vec{k}_2).

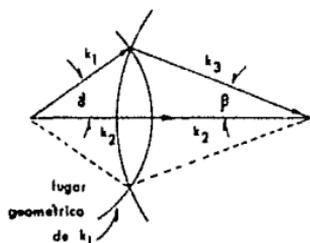


FIG. 6. UNA CONSTRUCCIÓN PARA ENCONTRAR LA DIRECCIÓN DE PROPAGACIÓN DE \vec{k}_3 , DE LA RADIACIÓN ANTI-STOKES.

Esta es la razón por la cual la radiación anti-Stokes se emite en la forma de una cáscara cónica con un ángulo de ápice mitad β respecto a la dirección de propagación del láser.

La situación de la "vida real" en emisión Raman estimulada es considerablemente más complicada que la anteriormente descrita. Además de la existencia de la radiación Stokes y anti-Stokes de orden superior ya mencionada, se presenta, como un ejemplo, una desviación en la dirección de la radiación anti-Stokes producida por efecto de autoenfoque ("atrapamiento").

7. Dispersión de Brillouin estimulada.

La dispersión de la luz desde una onda acústica excitada térmicamente fue considerada por primera vez en 1922 por Brillouin. El fenómeno de dispersión Brillouin estimulada en la cual la onda acústica que dispersa al rayo óptico es producida por el mismo rayo óptico fue descubierta en 1964. Se encontró que cuando un rayo láser intenso de frecuencia ω_2 pasaba a través de un cristal (safiro o cuarzo en el experimento original), una onda acústica coherente a la frecuencia ω_s se producía dentro del cristal, mientras, simultáneamente, un rayo óptico a frecuencia $\omega_2 - \omega_s$ se generaba. Ambos rayos acústico y óptico dispersado eran emitidos a lo largo de direcciones específicas, y su generación ocurría sólo arriba de un bien definido valor umbral de entrada. Un diagrama esquemático del arreglo experimental usado en el primer experimento se muestra en la figura (7).

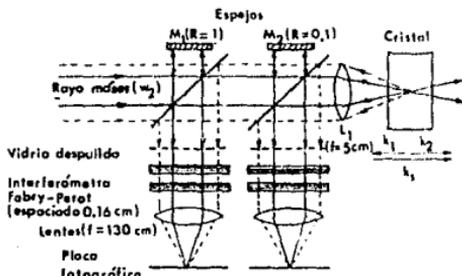


FIG. 7. UN DIAGRAMA ESQUEMATICO DEL ARREGLO EXPERIMENTAL USADO PARA DETECTAR DISPERSION BRILLOUIN ESTIMULADA. LA PRESENCIA DE UN RAYO OPTICO DISPERSADO A $\omega_2 - \omega_s$ ES DETECTADO POR EL INTERFEROMETRO FABRY-PEROT Y PRODUCE ANILLOS ADICIONALES QUE APARECEN EN EL PLANO FOCAL DONDE ELLOS SE FOTOGRAFIAN.

7.1. Descripción Doppler de la dispersión Brillouin.

Una idea física sobre la naturaleza de la dispersión de Brillouin podría ganarse si, antes de embarcarnos en un análisis

matemático detallado; consideramos el fenómeno en términos de conceptos básicos aplicables generalmente a eventos de dispersión de ondas. Considérese un rayo óptico (infinito) cuya frecuencia y vector de onda son respectivamente ω_2 y \vec{k}_2 , la cual incide sobre una onda de sonido de frecuencia ω_s viajando con velocidad v_s , como se muestra en la figura (8).

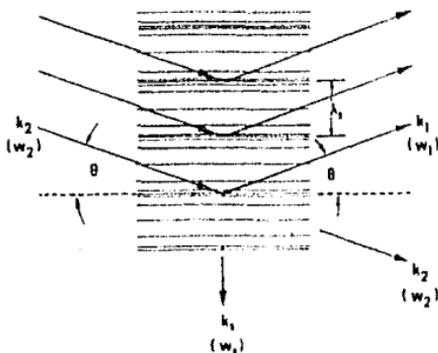


FIG. 8. UNA ONDA OPTICA DE FRECUENCIA ω_2 Y VECTOR DE ONDA \vec{k}_2 ESTA INCIDIENDO SOBRE UNA ONDA DE SONIDO DISPERSORA QUE POSEE UNA FRECUENCIA ω_s Y VELOCIDAD v_s ($\omega_s = \omega_s k_s$). PARTE DE LA ENERGIA A ω_2 SE DISPERSA EN LA FORMA DE UNA NUEVA ONDA OPTICA PROPAGANDOSE A LO LARGO DE \vec{k}_1 A UNA FRECUENCIA $\omega_1 = \omega_2 - \omega_s$.

Las regiones viajeras de compresión (parte oscura) y de rarefacción (parte blanca) corresponde a variaciones de la constante dieléctrica óptica (+ para compresión y - para rarefacción) respecto al caso donde no existe onda de sonido. Una variación de la constante dieléctrica produce reflexión parcial de la onda incidente en la dirección \vec{k}_1 . La onda acústica es por lo tanto análoga a una rejilla de difracción con rayado separado por una distancia igual a la longitud de onda acústica λ_s . Otra analogía podría hacerse con la difracción de rayos-X a partir de un cristal que posea capas atómicas equivalentes separadas una distancia λ_s .

Existe, de cualquier manera, una diferencia fundamental entre los dos ejemplos citados anteriormente y la dispersión de ondas

acústicas. A saber, que la onda acústica se mueve para producir un cambio Doppler en el rayo reflejado ω_1 , tal que $\omega_1 < \omega_2$ (como se ve en la figura 8).

Usando la analogía con la difracción de rayos X, la condición para reflexión es (esto implica que las dimensiones transversales de los rayos son infinitas).

$$2\lambda_2 \sin\theta = n\lambda_2 \quad (30.a)$$

Donde θ es el ángulo de incidencia como se muestra en la figura (8), $n=1,2,\dots$ es el orden de la dispersión y λ_2 es la longitud del rayo incidente en el medio. El cambio de frecuencia del rayo dispersado está dado, usando la fórmula de Doppler, por:

$$\omega_2 - \omega_1 = \frac{2\omega_2 v \sin\theta}{c} \quad (30.b)$$

Donde $c \gg v$ es la velocidad de la luz en el medio.

Combinando las dos últimas ecuaciones y tomando $n=1$ podemos resolverlas para el cambio de frecuencia y obtener:

$$\omega_2 - \omega_1 = \omega_a$$

i.e., la diferencia entre las frecuencias de los rayos ópticos incidentes y reflejados es exactamente la frecuencia ω_a del rayo acústico.

Desde un punto de vista mecánico cuántico este proceso puede verse como una aniquilación de un fotón a ω_2 con una generación simultánea de un fotón a ω_1 y de un fotón a ω_a . El resultado $\omega_2 - \omega_1 = \omega_a$ es, por lo tanto, una afirmación de la conservación de la energía.

Por lo que respecta a la conservación del momento, se requiere:

$$\vec{k}_2 = \vec{k}_1 + \vec{k}_a$$

Donde \vec{k}_a es el vector de la onda acústica. Puesto que $v \ll c$ tomamos $k_2 = k_1$ y la relación anterior produce un triángulo isósceles mostrado en la figura (11). Resolviendo para k_a obtenemos $k_a = 2k_2 \sin\theta$ tal que $\lambda_2 = 2\lambda_a \sin\theta$ y la condición de conservación del momento es, por lo tanto, la misma que la condición para reflexión de Bragg (30.a).

La producción de energía acústica puede explicarse observando que el trabajo hecho por la presión de radiación del rayo incidente óptico sobre la onda acústica dispersora es positivo.

La presencia de un rayo óptico a ω_2 produce una amplificación a ω_1 y ω_a . Si esta amplificación es lo suficiente para vencer las pérdidas y si proporciona retroalimentación positiva, oscilaciones simultáneas a ω_1 (ópticas) y a ω_2 (acústica) resultan.

7.2. Tratamiento clásico de la dispersión Brillouin.

La presencia de un campo eléctrico variando con el tiempo en un líquido (o cristal) produce una deformación electrostática variante con el tiempo y es así capaz de impulsar ondas acústicas en el medio.

La presencia de una onda acústica, por otro lado, modula la constante dieléctrica óptica y puede causar, por lo tanto, intercambio de energía entre las ondas electromagnéticas cuyas frecuencias difieren por una cantidad igual a la frecuencia acústica. El efecto es así análogo a la dispersión Raman estimulada con las ondas acústicas jugando el papel de vibraciones moleculares.

Antes de iniciar el estudio de nuevo se advierte que el sistema utilizado es el MKS.

Para derivar la ecuación de movimiento de la onda de sonido (ver figura 9), considérese un volumen diferencial $dx dy dz$ dentro de un fluido sujeto a un campo eléctrico E . Sea $u(x,t)$ la desviación de un punto x desde su posición de equilibrio tal que la deformación uni-dimensional es $\partial u / \partial x$. Introduciendo, fenomenológicamente, una constante γ (llamada constante fotoelástica) que describe el cambio en la constante dieléctrica inducida por la deformación a través de la relación.

$$\delta \epsilon = -\gamma \frac{\partial u}{\partial x} \quad (31)$$

tal que la presencia de la deformación cambia la densidad de energía electrostática almacenada por $-\frac{1}{2} \gamma (\partial u / \partial x) E^2$.

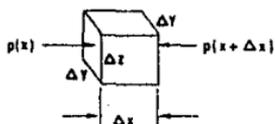


FIG. 9. UN VOLUMEN DIFERENCIAL DE LA SECCION TRANSVERSAL UNITARIA ($\Delta z \Delta y = 1$) Y LA LONGITUD Δx USADA PARA DERIVAR LA ECUACION DE MOVIMIENTO DE UNA ONDA DE SONIDO IMPULSADA ELECTROSTATICAMENTE.

Un cambio en la energía almacenada que se acompaña con una deformación implica la existencia de una presión. Esta presión p , se encuentra igualando el trabajo $p(\partial u / \partial x)$ hecho mientras se deforma una unidad de volumen (aquí tomamos $\Delta x \Delta y \Delta z = 1$) al cambio $-\frac{1}{2} \gamma (\partial u / \partial x) E^2$ de la energía. Esto resulta en:

$$p = -\frac{1}{2} \gamma E^2 \quad (32)$$

La fuerza electrostática neta en la dirección positiva x actuando sobre la unidad de volumen es así:

$$F_{\text{por unidad de volumen}} = -\frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\gamma}{2} \frac{\partial}{\partial x} E^2$$

Por lo tanto, la ecuación de movimiento de una unidad de volumen $\Delta x \Delta y \Delta z$ que sufre una deformación $u(r, t)$ debida a una fuerza por unidad de volumen $\partial p / \partial x$ (con ∂p la presión resultante que actúa sobre la unidad de volumen en la dirección x) es:

$$\frac{\partial p}{\partial x} = \rho \frac{\partial^2 u}{\partial t^2}$$

Donde ρ es la densidad de masa.

Considerando que la fuerza por unidad de volumen $\partial p / \partial x$ tiene una contribución electrostática $\gamma/2 (\partial E^2 / \partial x)$, una contribución elástica $T (\partial^2 u / \partial x^2)$ (derivada a partir de una presión elástica $p = p_0 - T (\partial u / \partial x)$ con $T = \rho (dp / d\rho)$ llamado modulo de elasticidad de volumen) y una contribución amortiguante $-\eta (\partial u / \partial t)$ (donde η es constante disipativa que explica fenomenológicamente las pérdidas acústicas), la ecuación de movimiento se transforma en:

$$-\eta \frac{\partial u}{\partial t} + T \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\gamma}{2} \frac{\partial}{\partial x} E^2 = \rho \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} \quad (33)$$

Enseguida suponemos que el campo acústico y los dos campos eléctricos son de la forma:

$$E_1(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} A_1(\vec{r}_1) e^{i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} + \text{c.c.}$$

$$E_2(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} A_2(\vec{r}_2) e^{i(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} + \text{c.c.}$$

$$u_1(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} u_1(\vec{r}_1) e^{i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} + \text{c.c.} \quad (34)$$

Donde r_1 , r_2 y r_3 son distancias algebraica medidas a largo de las direcciones respectivas de propagación \vec{k}_1 , \vec{k}_2 y \vec{k}_3 tal que $r_1 = (\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1 / k_1)$.

Retornando a la ecuación de onda (33) usemos las últimas expresiones (34) reemplazando x por r_1 , para obtener $\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}$

$$\frac{\partial^2 u}{\partial r_s^2} = -\frac{1}{2} \left[k_s^2 u_s + 2i k_s \frac{du_s}{dr_s} - \frac{d^2 u_s}{dr_s^2} \right] e^{i(\omega_s t - \vec{k}_s \cdot \vec{r})} + c.c.$$

Así que la ecuación (33) puede escribirse como:

$$\left[\left(-1 \eta \omega_s + \rho \omega_s^2 \right) u_s - \tau \left(k_s^2 u_s + 2i k_s \frac{du_s}{dr_s} \right) \right] e^{i(\omega_s t - \vec{k}_s \cdot \vec{r})} + c.c. = -\frac{\gamma}{4} \frac{\partial}{\partial r_s} \left\{ A_2(r_2) A_1^M(r_1) e^{i(\omega_s - \omega_2)t - (\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}} + c.c. \right\} \quad (35)$$

Donde se ha supuesto:

$$k_s^2 u_s \gg \frac{d^2}{dr_s^2} u_s \ll k_s \frac{d}{dr_s} u_s$$

Se sigue de (35) que

$$\omega_s = \omega_2 - \omega_1 \text{ y } \vec{k}_s = \vec{k}_2 - \vec{k}_1 \quad (36)$$

Con estas sustituciones el lado derecho (35) puede escribirse como:

$$-\frac{\gamma}{4} \left[\frac{d}{dr_s} (A_2 A_1^M) - i k_s A_2 A_1^M \right] e^{i(\omega_s t - \vec{k}_s \cdot \vec{r})} + c.c.$$

Y la ecuación (35) se reescribirá como:

$$2i k_s v_s^2 \frac{\partial}{\partial r_s} u_s(r_s) - \left[k_s^2 v_s^2 - \omega_s^2 + \frac{i \eta \omega_s}{\rho} \right] u_s(r_s) = \frac{i \gamma k_s}{4 \rho} A_2(r_2) A_1^M(r_1) \quad (37)$$

Donde se supuso $|\partial/\partial r_s (A_2 A_1^M)| \ll |k_s A_2 A_1^M|$ y se usó la relación $\tau/\rho = v_s^2$, siendo v_s la velocidad libre de propagación de la onda acústica en el medio.

7.2.a. La ecuación de onda electromagnética.

Partiendo de la ecuación de onda expresada en sistema MFS.

$$\left[k_1 \frac{d}{dr_1} A_1(r_1) \right] e^{i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} + c.c. = i \mu \frac{\partial^2}{\partial t^2} \langle \mathcal{P}_{NL} \rangle_1 \quad (38)$$

El término de polarización no lineal que aparece en la ecuación (38) es la polarización adicional causada por la onda acústica y está, consecuentemente, dada por $\langle \mathcal{P}_{NL} \rangle_1 = \langle \delta \epsilon \rangle E$ que usando (31), es igual a:

$$(\mathcal{P}_{NL})_i = -\gamma E(\vec{r}, t) \frac{\partial}{\partial t} u(\vec{r}, t) \quad (39)$$

De acuerdo a (34) el producto $E(\partial u / \partial t)$ contiene términos con factores de tiempo exponenciales $i(\pm\omega_1 \pm \omega_2)t$ y $i(\pm\omega_1 \pm \omega_2)t$.

Sólo los términos involucrando $i(\omega_2 - \omega_1) = i\omega_1$, de cualquier manera; pueden actuar como términos impulsores sincrónicos en el lado derecho de (38) tal que pueden ser escritos como

$$k \frac{d}{dr} A_1 e^{i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} = \frac{i\mu}{4} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left\{ \rightarrow A_2 e^{i(\omega_2 t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \times \right. \\ \left. \frac{\partial}{\partial t} \left[u_0^M e^{-i(\omega_0 t - \vec{k}_0 \cdot \vec{r})} \right] \right\}$$

o

$$k \frac{d}{dr} A_1 = \frac{i\omega_1^2 \gamma \mu}{4} A_2 \left(i k_1 u_0^M + \frac{d}{dr} u_0^M \right)$$

Donde se usó (36). Para el caso cuando $|du_0/dr_0| \ll k_0 u_0$ la ecuación de onda llega a ser:

$$\frac{d}{dr} A_1 = \frac{-\omega_1^2 \gamma \mu k_0}{4k_1} A_2 u_0^M - \frac{\alpha A_1}{2} \quad (40)$$

Donde el término de disipación $-\alpha A_1/2$ se añade para explicar las pérdidas del medio a ω_1 , que, hasta este punto, han sido despreciadas. Un tratamiento análogo conduce a la relación:

$$\frac{d}{dr} A_2 = \frac{-\omega_2^2 \gamma \mu k_0}{4k_2} A_1 u_0^M - \frac{\alpha A_2}{2} \quad (41)$$

para la onda a $\omega_2 = \omega_1 + \omega_0$.

Las relaciones (37), (40) y (41) forman un conjunto de ecuaciones acopladas involucrando la variable acústica $u_0(\vec{r}, t)$ y las amplitudes de campo $A_1(\vec{r}, t)$ y $A_2(\vec{r}, t)$.

La solución de estas ecuaciones bajo ciertas condiciones se discute en la siguiente sección.

7.2.b. Dispersión Brillouin estimulada.

Aquí consideramos la dispersión de Brillouin estimulada descrita en el párrafo introductorio. En este caso la aplicación

de un campo óptico lo suficientemente intenso a ω_2 produce una generación simultánea de un rayo óptico a ω_1 y un rayo acústico a $\omega_s = \omega_2 - \omega_1$. El análisis se simplifica limitándolo al caso en el cual la potencia sacada del campo de bombeo a ω_2 para las oscilaciones a ω_1 y ω_s , es pequeña comparada con la potencia de entrada. Bajo esta condición podríamos tomar $A_2(r_2) = \text{constante}$ y restringirnos a la solución de (37) y (40). Tomando en la primera de estas ecuaciones $\omega_s = k_s v_s$, es decir, suponiendo que la dispersión acústica es la misma que en una propagación libre y sin pérdidas. El resultado es:

$$\frac{d}{dr_s} u_s = -\frac{\eta}{2\rho v_s} u_s - \frac{\gamma}{8\rho v_s^2} A_2 A_1^M \quad (42)$$

La ecuación para el rayo ω_1 (40) se escribe como:

$$\frac{d}{dr_1} A_1^M = -\frac{\alpha A_1^M}{2} - \frac{j k_1 k_s}{4c_1} A_2^M u_s \quad (43)$$

Las variables r_1 y r_s , debe recordarse, son las distancias medidas a lo largo de las direcciones arbitrarias de propagación k_1 y k_s , de las ondas acústica y óptica, respectivamente. La dificultad de tener dos variables r_1 y r_s en las ecuaciones acopladas (42) y (43) puede removerse transformandolas a la coordenada ξ medida a lo largo de la bisectriz como se muestra en la Fig.(10).

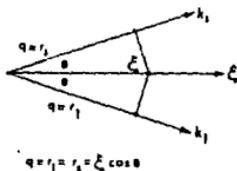


FIG. 10 CORRESPONDENCIA UNO A UNO ENTRE LA DISTANCIA r_s MEDIDA NORMAL AL FRENTE ACÚSTICO Y r_1 MEDIDA NORMAL AL FRENTE DE ONDA ÓPTICO (ω_1).

Usando la relación $r_2 = r_1 = \xi \cos \theta = q$, podemos reescribir (42) y (43) como:

$$\frac{d}{dq} u_1 = - \frac{\eta}{2\rho v_s} u_1 - \frac{\gamma}{8\rho v_s^2} A_2 A_1^M$$

$$\frac{d}{dq} A_1^M = - \frac{\alpha A_1^M}{2} - \frac{\gamma k_1 k_s}{4\epsilon_1} A_2^M u_1 \quad (44)$$

Estas ecuaciones describen el crecimiento, o decrecimiento, del desplazamiento acústico u_1 y del campo eléctrico A_1 , como una función de la distancia q , medida a lo largo de cualquiera de las dos direcciones de propagación. Suponiendo una razón de crecimiento exponencial tomamos:

$$u_1(q) = u_1^0 e^{gq}$$

$$A_1^M(q) = (A_1^0)^M e^{gq} \quad (45)$$

Y resolviendo las ecuaciones que resultan de sustituir (45) en (44) para el factor de crecimiento exponencial g . El resultado es:

$$g = - \frac{1}{4} (\alpha_s + \alpha) + \frac{1}{4} \sqrt{(\alpha_s + \alpha)^2 - 4 \left[\alpha_s \alpha - \frac{k_1 k_s \gamma^2 |A_2|^2}{8\epsilon_1 v_s^2} \right]} \quad (46)$$

Donde la constante de atenuación acústica es $\alpha_s = \eta/\rho v_s$. La constante de ganancia exponencial, g , por consiguiente, aumenta con la frecuencia acústica, $\omega = k_s v_s$. El vector de propagación, \vec{k}_s , se determina por (36) $\vec{k}_2 - \vec{k}_1 = \vec{k}_s$, llegando a ser idéntico a aquél correspondiente a la dispersión de Bragg mostrado en la figura (11). Se sigue que:

$$k_s = 2k_2 \sin \theta \quad (47)$$

Luego, la máxima ganancia se obtiene para el caso de dispersión reflejada $\theta = \pi/2$, donde $k_s = 2k_2$ y la onda acústica transmitida tiene frecuencia:

$$(\omega_s)_{\max} = \frac{2\omega_2 v_2 n_2}{c} \quad (48)$$

Cuando la constante de crecimiento exponencial, g , es positiva, las ondas acústicas excitadas térmicamente propagándose a lo largo de \vec{k}_s y las ondas ópticas de campo cero a ω_1 viajando a lo largo de \vec{k}_1 serán amplificadas simultáneamente de acuerdo a (45). Esto producirá un gran realce de las potencias respectivas a lo largo de estas dos direcciones. La condición $g \geq 0$ para

dispersión de Brillouin estimulada ocurre, de acuerdo con (48), cuando:

$$|A_2|^2 \geq \frac{8T \epsilon_1 \alpha_1 \alpha_2}{\gamma^2 k_1 k_2} \quad (49)$$

Donde hemos usado $v_0^2 = T/\rho$.

Si escogemos para expresar las atenuaciones acústica y óptica a las distancias de decaimiento (i.e., las distancias en las cuales las amplitudes disminuirán normalmente por un factor e^{-1}), $L_1 = 2/\alpha_1$ y $L_2 = 2/\alpha_2$; y expresando $|A_2|^2$ en términos de la intensidad, se obtiene:

$$I_2 > \frac{16cT \epsilon_1^2 n_1^2 n_2}{\gamma^2 k_1 k_2 L_1 L_2} \quad (50)$$

Para la condición umbral que marca el inicio de la dispersión Brillouin estimulada.

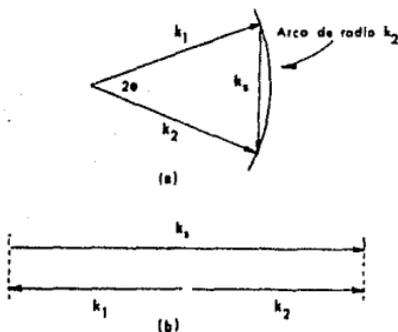


FIG. 11. RELACION VECTORIAL $\vec{k}_s = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ PARA DISPERSION BRILLOUIN ESTIMULADA EN UN MEDIO ISOTROPICO ($k_2 \gg k_1$).

(a) PARA UN ANGULO ARBITRARIO θ (b) PARA DISPERSION REFLEJADA ($\theta = \pi/2$).

7.2.c. Un ejemplo (Dispersión Brillouin estimulada).

Como una estimación de la potencia umbral para dispersión Brillouin estimulada, considere el siguiente cálculo del orden de

magnitud basado en cuarzo.

Sea:

$T = 5 \times 10^{10}$ newton/m² (valor típico del módulo de volumen sólido)
 $\gamma \approx \epsilon_0 \approx 10^{-11}$ (MKS) (valor típico de coeficiente electro-estrictivo)

$\lambda_2 \approx \lambda_1 = 1 \mu\text{m}$.

$L_1 = 1 \text{ cm}$.

$k_1 L_1 = 2\pi L_1 / \lambda_1 = 2\pi \times 10^6$

$\omega_2 \approx \frac{2\omega_1 v_a n}{c} \approx 2\pi(6 \times 10^6)$ estimación basada en $v_a = 3 \times 10^3 \text{ m/s}$.

$L_2 = 10^{-1} \text{ cm}$ estimación basada en datos típicos para cuarzo y safiro.

Usando los datos anteriores en las ecuaciones (50) obtenemos:

$$\left(\frac{\text{Potencia}}{\text{Área}} \right)_{\text{umbral}} \approx 10^7 \text{ watts/cm}^2.$$

Este nivel de potencia es alcanzable mediante láseres de pulsos gigantes. En la mayoría de los líquidos el fenómeno de atrapamiento de rayos produce intensidades que exceden el valor umbral para dispersión Brillouin estimulada aun a potencias moderadas de entrada. Como consecuencia el umbral observado experimentalmente en la mayoría de los materiales es el del atrapamiento de rayos.

9. Auto-enfoque de rayos ópticos.

Los valores umbrales medidos de la intensidad de campo óptico necesarios para iniciar la Dispersión Raman estimulada en la mayoría de los líquidos están muy abajo los valores predichos por (23), siendo el factor de discrepancia en algunos casos del orden de 100. Esta diferencia es debida al fenómeno de autoenfoque.

El fenómeno de autoenfoque se manifiesta cuando la potencia del rayo excede un valor crítico, satisfecha la condición anterior el diámetro del rayo se contrae continuamente al propagarse a través del material, formando finalmente un "foco" intenso después de cierta distancia. Cerca del punto focal, la densidad de potencia usualmente excede la densidad de potencia requerida para dispersión, así que el umbral medido corresponde al del autoenfoque y no al de la dispersión Raman.

El efecto de auto-enfoque ocurre como resultado de la combinación de una constante dieléctrica dependiendo del campo eléctrico y de una variación espacial de la intensidad láser. En la cual el rayo es más intenso en el centro que en los bordes, como lo muestra la figura (12).

La dependencia de la constante dieléctrica relativa al campo puede expresarse como la suma de una constante dieléctrica lineal y de una pequeña contribución no lineal $\delta\epsilon$.

$$\begin{aligned} \epsilon_{\text{total}} &= \epsilon_L + \delta\epsilon \\ &\cong \epsilon_L + \epsilon_2 \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle \end{aligned} \quad (51)$$

Donde $\langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle$ es un promedio temporal del cuadrado del campo óptico (siendo así igual a la mitad del cuadrado de la amplitud i.e., $\langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle = \frac{1}{2} |A|^2$, con $E = A e^{-i(\omega t - kz)}$).

Aunque la contribución no lineal $\delta\epsilon$, en general, puede tener términos mayores en $\langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle$, i.e.,

$$\delta\epsilon = \epsilon_2 \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle + \epsilon_4 \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle^2 + \dots \quad (52)$$

basta sólo considerar el primer término de esta expansión de $\delta\epsilon$ para explicar el efecto de auto-enfoque.

Físicamente, una no linealidad de la forma (51) se manifiesta como un índice de refracción dependiente de la intensidad.

$$n_{\text{total}} = \sqrt{\epsilon_{\text{total}}} \cong n_L + \delta n = n_L + n_2 \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle \quad (53)$$

Donde $n_2 = \frac{1}{2} (\epsilon_2 / n_L)$.

Si $n_2 < 0$ el índice de refracción n_{total} conduce a un auto-enfoque en un rayo cuya intensidad sea una función monótona decreciente de la distancia al eje del rayo (Por ejemplo, tal es el caso de un rayo Gaussiano en el modo TM_{00} , para el cual

$A(r) = A_0 e^{-r^2 / \omega_0^2}$, válida en el límite de campo cercano, donde ω_0 es el radio del rayo en el cual la amplitud del campo eléctrico decae hasta un valor e^{-1} respecto a su valor máximo). Lo anterior es debido a que entre más lejos se encuentre del eje una porción del frente de onda más rápido se propaga, causando que el frente de onda total, inicialmente plano, llegue a ser cóncavo en la dirección de propagación. Dicho en otra forma, el rayo actúa como su propia lente (positiva).

En general $n_2 > 0$ se obtiene en ausencia de absorción. Por lo tanto el caso $n_2 < 0$ sólo puede realizarse mediante mecanismos conectados con la absorción de luz.

En las figuras (12.a-12.c) se ilustra cualitativamente la conducta de un rayo Gaussiano en un medio lineal y en un medio no lineal. En el medio lineal el rayo diverge debido a la difracción (Fig.12.a.). Por el contrario en el medio no lineal el rayo se auto-enfoca al imponerse el índice de refracción no lineal a la difracción. En la figura (12.c) se muestra el auto-desenfocado ($n_2 < 0$). Generalmente existe una competencia entre los procesos de auto-enfoque y difracción, determinando la intensidad relativa de dichos procesos la conducta final del rayo

de luz.

Por otro lado, el cambio en el índice de refracción δn introducido por la contribución no lineal produce, en el dominio espectral, un cambio de fase variante con el tiempo $\delta\phi = \delta kz = \delta n\omega z/c$; el cual puede generar una modulación de frecuencia.

$$\delta\omega = - \frac{\partial}{\partial t} (\delta\phi) = - \frac{\omega z}{c} n_2 \frac{\partial}{\partial t} \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle \quad (54)$$

Para $n_2 > 0$ el cambio de frecuencia será negativo en el borde inicial de un pulso de luz y positivo en su borde final.

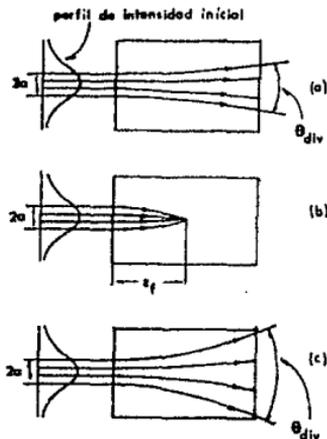


FIG. 12. DESCRIPCION DE UN RAYO GAUSSIANO EN UN MEDIO LINEAL

($n = n_L$ FIG. 1.a) Y EN UN MEDIO NO LINEAL ($n = n_L + n_2 \langle E \cdot E \rangle$).

$n_2 > 0$ FIG. 1.b; $n_2 < 0$ FIG. 1.c). EN LA FIGURA 1.a), EL RAYO DE LUZ DIVERGE DEBIDO A LA DIFRACCION. EN EL MEDIO NO LINEAL CON $n_2 > 0$ LA RADIACION ES CONDUCTIDA A LA REGION DE MAYOR CAMPO (AUTO-ENFOQUE). SI $n_2 < 0$ EL RAYO DIVERGE EXCEDIENDO LA DIVERGENCIA DE LA DIFRACCION PURA (AUTO-DESENFQUE).

8.1. Mecanismos físicos productores de índice no lineal.

Es posible demostrar que una constante dieléctrica $\epsilon \cong \epsilon_L + \epsilon_2 \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle$ resulta de una polarización de la forma

$$\vec{p} = \epsilon_0 \chi \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle \vec{E} \quad (55)$$

Donde $\epsilon = 1 + \chi$ y $\epsilon_2 = \chi^{(2)}$

Los mecanismos físicos productores de la polarización no lineal $\epsilon_0 \chi^{(2)} \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle \vec{E}$ pueden ser:

- 1) reorientación molecular.
- 2) hiperpolarizabilidad electrónica.
- 3) electrorestricción.
- 4) efectos térmicos.
- 5) libración molecular.
- 6) otros mecanismos.

Algunos de estos mecanismos se discutirán a continuación.

8.1.a. Efecto Kerr orientacional.

El efecto Kerr orientacional molecular es el efecto que más contribuye al índice no lineal. Este efecto ocurre en líquidos y gases compuestos de moléculas anisotrópicas cuyas polarizabilidades ópticas son diferentes en distintas direcciones coordenadas. El caso más simple se presenta en moléculas con simetría rotacional respecto a su eje, las moléculas poseen una polarizabilidad α_{\parallel} a lo largo de su eje distinta a la polarizabilidad α_{\perp} perpendicular al mismo eje. En ausencia de un campo eléctrico, las moléculas se orientan en direcciones al azar produciendo un índice de refracción isotrópico. La aplicación de un campo puede inducir un momento dipolar en la dirección del campo. El campo puede entonces interactuar con este momento inducido ejerciendo un torque, proporcional a $(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp})E^2$, sobre la molécula. Puesto que el momento inducido y el campo tienen la misma fase y frecuencia esta torque tendrá una componente cd, la cual tenderá a rotar a la molécula en la dirección del campo. La rotación incremental de una molécula produce el siguiente cambio en el índice de refracción paralelo al campo eléctrico (Ref. 74, p.156)

$$\delta n = \frac{2}{3} \delta n_{\parallel} \left[\cos^2 \theta - \frac{1}{3} \right]$$

$$\text{Donde } \delta n_{\parallel} = \frac{4\pi}{3} \frac{(n_L^2 + 2)^2}{9n_L} N (\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp})$$

N es la densidad de las moléculas y θ es el ángulo entre el eje de la molécula y el campo eléctrico. El promedio se realiza sobre todas las orientaciones utilizando como factor de peso una distribución de Boltzmann, lo cual se refleja en la energía de interacción: $(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp})E^2 \cos^2 \theta$. Para alineamiento completo ($E \rightarrow \infty$) $\langle \cos^2 \theta \rangle = 1$ y $\delta n = \delta n_{\parallel}$. En el caso de alineamiento fraccional pequeño se ha derivado la siguiente expresión aproximada para el índice no lineal

$$n_2 = \frac{1}{15n_L} \left[\frac{n_L^2 + 2}{3} \right]^4 \left\{ \frac{4\pi}{3} N \right\} \frac{(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp})^2}{KT}$$

Como un ejemplo, en CS_2 , $\delta n_{\parallel} = 0.58$ y $n_2 \approx 1.7 \times 10^{-11}$ ves. El índice de refracción perpendicular al rayo se reduce por una cantidad igual a la mitad del valor que el índice cambia en la dirección paralela. Consecuentemente, la birrefringencia es:

$$\delta n_{\parallel} - \delta n_{\perp} = \frac{1}{2} n_2 \vec{E} \cdot \vec{E}$$

Si la luz circularmente polarizada se utiliza en lugar de luz linealmente polarizada, entonces el cambio de índice en la dirección perpendicular será de sólo un $\frac{1}{4}$ del cambio del índice en la dirección paralela.

Por otro lado, cuando el campo óptico cesa repentinamente el alineamiento incremental de las moléculas tenderá a una dirección al azar a causa de las colisiones con sus moléculas vecinas. La misma relajación ocurre en el efecto de orientación de moléculas polares producido por un campo eléctrico cd (efecto Kerr cd). Debe haber demostrado que el tiempo de relajación de la constante dieléctrica cd se relaciona con la viscosidad η mediante la expresión:

$$\tau_D = \frac{4\pi\eta a^3}{KT}$$

Donde a es el radio del volumen molecular. Si la orientación al azar del alineamiento es producido por un proceso de difusión, el tiempo de relajación del efecto Kerr ca. es igual a un tercio del tiempo de relajación del dieléctrico (tiempo de relajación de Debye), i. e.,

$$\tau = \frac{1}{3} \tau_D$$

En algunos líquidos el alineamiento en direcciones al azar puede resultar de una sola colisión, en cuyo caso $\tau = \tau_D = \tau_c$, donde τ_c es el tiempo medio de colisión.

B.1.b. Hiperpolarizabilidad electrónica.

En fluidos compuestos de moléculas isotrópicas y en sólidos, una importante contribución al índice no lineal se debe a la polarizabilidad electrónica no lineal. Este efecto, el cual es producido por la distorsión inducida ópticamente en la distribución de carga electrónica del material, es esencialmente instantáneo ($\tau \approx 10^{-15}$ s), con una magnitud mucho menor que la del efecto orientacional Kerr (típicamente $n_2(\text{electrónico}) \approx 10^{-13}$ ues). En este efecto la diferencia entre los cambios de índices inducidos paralela y perpendicularmente al campo (birrefringencia) se determina por las propiedades de simetría del material particular. Ejemplos de materiales en los cuales el índice no lineal electrónico es importante son el argón líquido, el CCl_4 , el vidrio, el caroteno- β , el CS_2 y el benceno (Cowyoung ha determinado que la no linealidad electrónica contribuye a la n_2 total de estos dos últimos materiales con un 13% y con un 20% respectivamente).

La contribución electrónica al índice de refracción no lineal está presente en todos los materiales. Excepto por una corrección debida a la dispersión, es posible relacionar directamente n_2 con la susceptibilidad no lineal de tercer orden $\chi^{(3)}$.

B.1.c. Electrostricción.

La electrostricción también puede contribuir al índice de refracción no lineal. La densidad de energía interna $\epsilon |E|^2$ de una onda electromagnética intensa puede causar una tensión, resultando esto en un cambio de densidad que altera el índice de refracción. La magnitud del índice no lineal estacionario es:

$$n_2(\text{electrostricción}) = \frac{n_L \beta}{2\pi} \left[\rho \frac{\partial n}{\partial \rho} \right]^2$$

Donde ρ es la densidad y β es la compresibilidad volumétrica. La magnitud de n_2 puede ser muy grande, típicamente del orden de 10^{-11} a 10^{-12} ues. De cualquier manera, la velocidad de respuesta es muy lenta, puesto que el crecimiento de los cambios de densidad está gobernado por la propagación acústica ($\tau \approx 10^{-8}$ a 10^{-9} s). Consecuentemente, la electrostricción no es usualmente

importante para pulsos de picosegundos.

8.1.d. Cambios de índice térmicos.

Los efectos térmicos pueden también contribuir al índice de refracción no lineal. Usualmente el n_2 térmico es negativo, y produce un efecto de auto-desenfoque. En general hay 2 componentes que contribuyen al cambio del índice inducido térmicamente, uno proveniente de efectos puramente térmicos a volumen constante y otro debido a expansiones térmicas. i.e.,

$$\frac{dn}{dT} = \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_v + \left(\frac{\partial n}{\partial \rho}\right)_T \frac{\partial \rho}{\partial T}$$

El primer término se produce por cambios en la entropía y puede ser muy rápido, aunque con una magnitud pequeña. Por su parte, la contribución de la expansión térmica tiene una respuesta lenta debido al crecimiento requerido de una onda de densidad similar a lo que ocurre en electrostricción. La relajación de ambas contribuciones es muy lenta, siendo determinada por la difusión del calor lejos del rayo óptico (típicamente de 10^{-3} a 1 s).

TABLA. 2. INDICES DE REFRACCION NO LINEALES Y TIEMPOS DE RELAJACION EN ALGUNOS MATERIALES.

LIQUIDO	n_2 (10^{-13} ues)	t (ps)
CS ₂	200, 170, 110	2, 1
Tolueno	45	5, 3
Nitrobenceno	140, 100	92, 36, 30
Benceno	20, 25	3, 2
Agua	1, 4	
Acetona	6, 8	
SOLIDO	n_2 (10^{-13} ues)	
KDP	3, 0	
Cuarzo fundido	1, 2, 1, 4	
vidrio BK-7	1, 7	
Rubi	1, 5	
Caroteno- β	100	
Lucita	2, 7	
Al ₂ O ₃	3, 5	

Concluimos la discusión de los mecanismos físicos con la tabla 2, en la cual se recopilan los valores de n_2 y los tiempos de relajación de algunos materiales representativos. La tabla está dividida en 2 partes, la primera trata a los líquidos; y la segunda a los sólidos. En el caso de líquidos con grandes valores de n_2 el mecanismo de contribución dominante es probablemente el efecto Kerr orientacional; en el resto de los materiales la hiperpolarizabilidad electrónica será probablemente el principal productor de n_2 .

8.2. Ecuaciones de auto-enfoque.

Al aplicar las ecuaciones de Maxwell (en sistema MKS) para analizar el auto-enfoque suponemos que ϵ_2 es conocido, escribiéndose

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial}{\partial t} \left[(\epsilon + \epsilon_2 E^2) \vec{E} \right]$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}$$

Con $E^2 = \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle$.

Tomando el rotacional de $\nabla \times \vec{E}$ y sustituyendo $\nabla \times \vec{H}$ para obtener la ecuación de onda

$$\nabla^2 \vec{E} - \mu \epsilon \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} - \mu \epsilon_2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \langle E^2 \vec{E} \rangle = 0 \quad (56)$$

Considerando $\mu \epsilon = 1/c^2$ donde c es la velocidad de propagación de la luz en el medio (con $E=0$) y suponiendo luz polarizada a lo largo de la dirección \hat{e} ; obtenemos:

$$\nabla^2 \vec{E}_e - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}_e - \frac{\epsilon_2}{\epsilon c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \langle E^2 \vec{E}_e \rangle = 0 \quad (57)$$

Suponiendo propagación a lo largo de la dirección z y tomando \vec{E}_e en la forma

$$\vec{E}_e = \frac{1}{2} \left[A(\vec{r}) e^{i(\omega t - kz)} + c. c. \right]$$

Donde $k = \omega/c = \omega \sqrt{\mu \epsilon}$. Usando el resultado

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \left[A e^{-ikz} \right] = e^{-ikz} \left[-k^2 A - 2ik \frac{\partial}{\partial z} A + \frac{\partial^2}{\partial z^2} A \right]$$

la ecuación (57) llega a ser:

$$\nabla_{\perp}^2 A - 2ik \frac{\partial}{\partial z} A + k^2 \left[\frac{\epsilon_2}{2\epsilon} \right] |A|^2 A = 0 \quad (58)$$

Donde se usó $E^2 = \langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle = \frac{1}{2} |A|^2$. La situación considerada aquí es aquella en la cual:

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} A \ll \frac{\partial^2}{\partial x^2} A \approx \frac{\partial^2}{\partial y^2} A$$

En otras palabras el enfoque tiene lugar a una distancia z la cual es grande comparada con las dimensiones transversales del rayo. Podemos entonces reemplazar ∇_{\perp}^2 por

$$\nabla_{\perp}^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}$$

el último miembro se aplica al caso de simetría circular, la que se supone aquí. La ecuación de onda (58) se transforma entonces en:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} A - 2ik \frac{\partial}{\partial z} A + k^2 \frac{\epsilon_2}{2\epsilon} |A|^2 A = 0 \quad (59)$$

Donde se supuso $(1/r)(\partial A/\partial r) \ll \partial^2 A/\partial r^2$. Para el caso de ausencia de variación transversal, i.e., $\partial/\partial r = 0$, la solución de la ecuación (59) es:

$$A(z) = A(0) e^{-ik(\epsilon_2/4\epsilon) |A|^2 z} \quad (60)$$

La cual corresponde a un incremento en el vector de propagación \vec{k} por un factor $(k \epsilon_2/4\epsilon) |A|^2$, causando, como se discutió antes, el auto-enfoque del rayo cuyo perfil de intensidad radial decae con r . Una solución exacta de (59) no es posible, por lo tanto, siguiendo el análisis hecho por Kelley nos limitaremos a describir el auto-enfoque "a gran escala", en el cual el rayo se contrae uniformemente hacia un punto localizado a una distancia bien definida; para esto consideraremos sólo la dependencia transversal del exponente en (60), sustituyendo la expresión:

$$A(r, z) = A(z) e^{-ik(\epsilon_2/4\epsilon) |A(r, z)|^2 z} \quad (61)$$

en (59). Podemos así escribir directamente

$$\frac{\partial}{\partial r} A = A(z) \left[-1 \frac{kc}{4c} \right] zA \frac{\partial}{\partial r} |A|^2$$

y definir un parámetro a por:

$$\frac{1}{a^2} = - \left[\frac{1}{|A|^2} \right] \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} |A|^2$$

Suponiendo que a es una constante (esto es verdad para rayos Gaussianos) la ecuación de onda (59) se transforma en:

$$\frac{\partial}{\partial z} A = \frac{c}{2kz} |A|^2 zA - \frac{1kc}{4c} |A|^2 A = 0 \quad (62)$$

El primer término del lado derecho en (62) corresponde a un aumento en la intensidad con z , mientras el segundo término actúa sobre la fase. Definiendo z_f (distancia de enfoque) como la distancia en la cual el cambio en A es comparable a A , obtenemos:

$$z_f \approx \frac{a}{|A|} \sqrt{\frac{8c}{z}} \quad (63)$$

En un rayo con un perfil de intensidad Gaussiano dado por:

$$A_{m,n}^{(r)}(z) = A_0 \frac{w_0}{w} H_m \left(\sqrt{\frac{2}{z}} \frac{x}{w} \right) H_n \left(\sqrt{\frac{2}{z}} \frac{y}{w} \right) e^{-i k z} e^{-\frac{x^2}{z} - \frac{y^2}{z}} \quad (64)$$

$$\text{Donde } w(z) = w_0 \left[1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right]^{1/2}; \quad z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$$

Con H_m y H_n polinomios de Hermite de orden m y n respectivamente; w_0 el radio del rayo en el cual la amplitud del campo decae a un valor e^{-2} respecto a su valor máximo; y λ la longitud de onda de la onda óptica.

el parámetro a definido anteriormente, llega a ser:

$$a = \frac{w_0}{z}$$

Puesto que la potencia total transportada por el rayo es $P \approx (c\omega/c^2) |A|^2$, podemos escribir (63) como:

$$z_f \cong \omega_0^2 \varepsilon \sqrt{\frac{\pi c}{\varepsilon^2 P}} \quad (65)$$

La aproximación resultante de despreciar la variación transversal de $|A(r, z)|$ en (61) causa que el efecto de difracción este ausente de nuestros resultados. Esto se manifiesta de dos maneras:

- 1) La ecuación (62) predice un incremento infinito de la intensidad cuando $z \rightarrow \infty$, i.e., el enfoque se realiza hasta un filamento puntual.
- 2) No hay umbral para el enfoque y el angostamiento del rayo ocurre para cualquiera $|A|$.

Para conseguir una expresión de la potencia del rayo que inicie el auto-enfoque es necesario introducir el efecto de difracción en el problema. Esto se hace caracterizando la dispersión del rayo mediante z_d (distancia de difracción) la cual es la distancia en donde el incremento del radio del rayo debido a la difracción es igual al radio mismo. De acuerdo con (64) esta distancia es:

$$z_d = \frac{\sqrt{2} \pi \omega_0^2}{\lambda} \quad (66)$$

El inicio del agotamiento del rayo ocurre cuando el efecto de enfoque apenas "balancea" la dispersión debido a la difracción, i.e., cuando $z_d \approx z_f$. Usando (65) y (66), esto ocurre cuando la potencia total del rayo excede el nivel crítico.

$$P_c = \frac{\varepsilon^2 c \lambda^2}{2\pi \varepsilon} \quad (67)$$

Por ejemplo, en CS_2 la potencia crítica $P_c \approx 2 \times 10^4$ W, así que, el auto-enfoque puede ocurrir aun a niveles de potencia moderada.

Es importante notar que cerca del punto de enfoque, la contracción del rayo cesa, y uno o más filamentos estables de luz se forman (la dimensión del diámetro de estos filamentos es entre 3 y 6 μm en muchos dieléctricos); dependiendo el número de filamentos de la potencia del rayo. Estos filamentos se dice que provienen de mecanismos de auto-atrapamiento de escala pequeña, los cuales limitan el auto-enfoque cerca del foco. Algunos de estos mecanismos son:

- 1) Saturación del índice no lineal.
- 2) Respuesta transitoria del índice no lineal.
- 3) Ruptura del dieléctrico.

4) Dispersión Raman estimulada.

5) Dispersión Brillouin estimulada.

(Sección basada en Ref. 68, capítulo 5 y Ref. 93, capítulo 23).

9. Conjugación de fase.

La conjugación de fase es uno de los fenómenos importantes derivados a a partir de las interacciones ópticas no lineales debido al gran número de aplicaciones prácticas que presenta en las áreas de corrección de distorsiones ópticas, reconstrucción de imágenes y en varios métodos de procesamiento de señal.

La conjugación de fase consiste en la generación de un campo conjugado E_{cf} de una onda óptica incidente E , cuando dicha onda incidente atraviesa un medio no lineal.

El conjugado de fase de un campo óptico E de frecuencia ω , propagándose en la dirección z

$$E(r, z, t) = \frac{\delta(r)}{2} e^{i(kz - \omega t + \phi(x, y))} + c.c.$$

$$E(r, z, t) = A(r, z) e^{i(\omega t - kz)} + c.c. \quad (58)$$

Donde $A(r, z) = \frac{\delta(r)}{2} e^{i\phi(x, y)}$ con $\delta(r)$ real.

Se define como:

$$E_{cf}(r, z, t) = \frac{\delta(r)}{2} e^{i(kz - \omega t - \phi(x, y))} + c.c. \quad (59)$$

Es decir, el conjugado de fase de la onda E sólo contiene al conjugado complejo de la parte espacial, dejando la parte temporal sin cambios. La onda conjugada corresponde a una onda moviéndose en la dirección $-z$, con la fase $\phi(x, y)$ invertida respecto a la de la onda incidente. Se puede pensar el proceso como una combinación de un tipo de reflexión con una inversión de fase. Esto es equivalente a dejar la parte espacial de E inalterada invirtiéndose el signo del tiempo; en este sentido la conjugación de fase es equivalente a una "inversión temporal".

Una idea intuitiva de la conjugación de fase se obtiene comparando las reflexiones de un espejo ordinario y de un "espejo conjugado". Como muestra la figura (13), una onda esférica divergente golpeando un espejo ordinario a un ángulo θ se aleja de él a un ángulo θ y continúa divergiendo. En contraste el mismo rayo golpeando el espejo conjugado

se convierte en un rayo convergente que vuelve a recorrer el camino del rayo incidente.

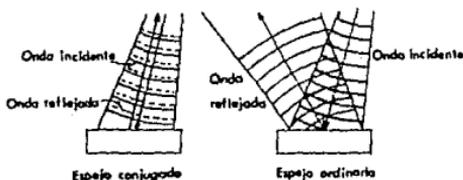


FIG. 13. ESPEJOS ORDINARIO Y CONJUGADO. EL ESPEJO ORDINARIO REFLEJA LA LUZ DE MANERA USUAL. EL ESPEJO CONJUGADO PRODUCE UNA IMAGEN INVERTIDA TEMPORALMENTE DEL RAYO INCIDENTE.

La conjugación de fase puede generarse mediante el mezlado degenerado de 4 ondas (abreviado MD40), mediante el mezlado de 3 ondas y a través de varias formas de dispersión estimulada, incluyendo dispersión de Brillouin, Raman y Rayleigh estimuladas. Cada una presenta ventajas y desventajas respecto a la producción de ondas conjugadas. Por ejemplo, conjugadores de fase basados en dispersión de Brillouin estimulada son capaces de alta eficiencia y alta potencia pero producen señales que no son en teoría conjugados de fase precisos de los campos incidentes por no poseer la misma frecuencia. De estos procesos productores de ondas conjugadas se discutirán el MD40 y el mezlado de 3 ondas.

9.1. Mezlado degenerado de 4 ondas.

El mezlado degenerado de 4 ondas es un proceso no lineal de tercer orden en el cual tres ondas incidentes se mezclan en un medio no lineal para generar una cuarta onda (de salida), con la característica de que las 4 ondas que interaccionan tienen la misma frecuencia (de ahí el adjetivo de degenerado); aunque son distinguibles por su polarización o su dirección de propagación.

Las tres ondas incidentes consisten de dos ondas planas de bombeo contrapropagantes E_1 y E_2 (el 1 para la onda propagándose hacia adelante y el 2 para la onda propagándose hacia atrás), y de una onda de prueba E_p , la cual forma un ángulo θ con las ondas de bombeo. El arreglo geométrico de las 3 ondas incidentes puede verse en la figura(14).

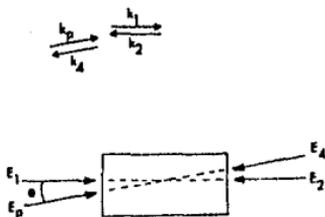


FIG. 14. ILUSTRACION ESQUEMATICA DEL ARREGLO UTILIZADO PARA OBSERVAR LA CONJUGACION DE FASE MEDIANTE MEZCLADO DEGENERADO DE 4 ONDAS. INTERACCION REFLEJADA.

Las 3 ondas incidentes se acoplan a través de la susceptibilidad de tercer orden del medio no lineal, para producir la cuarta onda E_4 a partir de una polarización no lineal $\chi_4^{NL} = \chi^{(3)} E_1 E_2 E_p$, siendo esta onda generada E_4 proporcional al campo complejo espacial de E_p .

Para analizar como esta polarización no lineal de tercer orden produce al campo conjugado supongamos que los campos de las cuatro ondas interactuantes son iguales a:

$$\bar{E}_1(r, z, t) = \bar{A}_1 e^{i(\omega t - k_1 z')} + c.c. \quad (70.a)$$

$$\bar{E}_2(r, z, t) = \bar{A}_2 e^{i(\omega t - k_2 z')} + c.c. \quad (70.b)$$

$$\bar{E}_p(r, z, t) = \bar{A}_p(r, z) e^{i(\omega t - k_p z)} + c.c. \quad (70.c)$$

$$\bar{E}_4(r, z, t) = \bar{A}_4(r, z) e^{i(\omega t - k_4 z)} + c.c. \quad (70.d)$$

Donde la dirección z' se usa para la dirección de propagación de las ondas de bombeo; z para la dirección de propagación de las ondas de prueba y generada; y r para la coordenada transversal de las ondas de prueba y generada (las ondas de bombeo se suponen ondas planas).

Además limitemos el estudio a un medio isotrópico bajo una geometría no colineal entre las ondas de prueba y de bombeo ($\theta \neq 0$), bajo estas condiciones se puede demostrar que la polarización no lineal generadora de la onda conjugada de E_p

recibe la contribución de 3 distintos términos.

$$\begin{aligned} \bar{P}_4(\omega) = & C'(\theta) (\bar{A}_1 \cdot \bar{A}_p^*) \bar{A}_2 \\ & + C''(\pi - \theta) (\bar{A}_2 \cdot \bar{A}_p^*) \bar{A}_1 \\ & + D (\bar{A}_1 \cdot \bar{A}_2) \bar{A}_p^* \end{aligned} \quad (71)$$

Donde los coeficientes $C'(\theta)$, $C''(\pi - \theta)$ y D están relacionados con las componentes de la susceptibilidad tensorial $\chi^{(2)}$. Cabe mencionar que en la expresión anterior se han despreciado aquellos términos de la polarización que describen los efectos de cambios de fase no lineales, por ser irrelevantes en una primera visión del proceso de conjugación de fase, no obstante la expresión completa de $\bar{P}_4(\omega)$ puede encontrarse en Peintjes capítulo 5).

Cada uno de los términos anteriores de $\bar{P}_4(\omega)$ posee una interpretación física. Los primeros dos términos contienen un producto escalar que representa la interferencia de la onda de prueba con una de las ondas de bombeo. Esta interferencia causa una modulación espacial periódica de la polarización del medio, y como consecuencia produce una rejilla de difracción de volumen u holograma. Toda la información respecto a la fase del rayo de prueba estará, por consiguiente, almacenada en la rejilla. El segundo rayo de bombeo es reflejado por las zonas del patrón de difracción, es decir, el segundo rayo de bombeo lee la información que respecto a la fase está almacenada en el patrón; produciéndose así la onda reflejada E_4 (ver figura 15). Puesto que el segundo rayo de bombeo incide desde una dirección opuesta a la del primer rayo, el rayo reflejado E_4 es proporcional al conjugado de fase del rayo de prueba E_p . Aunque la reflexión desde cada zona del patrón es débil, la suma de todas las reflexiones es grande, transfiriéndose así una considerable cantidad de energía del rayo de bombeo al rayo reflejado E_4 .

En el medio no lineal se forman, de hecho, dos patrones de difracción; cada rayo de bombeo genera uno de estos patrones desde el cual el otro rayo de bombeo se refleja. La rejilla formada por la interferencia del rayo de prueba E_p y el rayo de bombeo E_1 tiene un espaciado dado por

$$\Lambda_1 = \lambda / (2 \sin(\theta/2)) \quad (72.a)$$

Este espaciado es relativamente ancho y disminuye cuando el ángulo θ aumenta. El espaciado de la rejilla formada por la

interferencia de E_1 con el rayo de bombeo E_2 está dado por

$$\Lambda_z = \lambda / (2 \cos(\theta/2)) \quad (72.b)$$

Este espaciado es relativamente angosto y aumenta cuando el ángulo θ aumenta. Para geometrías de 90° el espaciado de las dos rejillas es el mismo.

La condición de dispersión de Bragg para un rayo de bombeo desde la rejilla apropiada es idéntica a la condición de acoplamiento de fase $\Delta k = 0$.

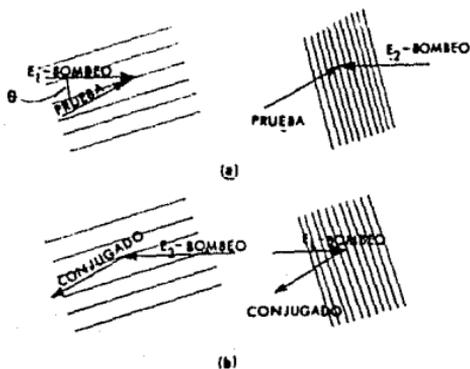


FIG. 15. ILUSTRACION ESQUEMATICA DE REJILLAS FORMADAS POR LA INTERFERENCIA DE LA ONDA DE PRUEBA INCIDENTE CON LA ONDA DE BOMBEO PROPAGANDOSE "HACIA ADELANTE" E_1 (IZQUIERDA) Y CON LA ONDA DE BOMBEO PROPAGANDOSE "HACIA ATRAS" E_2 (DERECHA).

a. FORMACION b. LECTURA (OBTENIDO DE REINTJES P. 364, FIG. 15).

En los dos primeros términos de la polarización no lineal, las constantes C' y C'' involucran, además de la susceptibilidad no lineal, efectos relacionados con el desvanecimiento de las rejillas; por ejemplo, el movimiento atómico o la difusión. Estos

efectos son sensibles al espaciado del patrón de difracción y, por lo tanto, afectan de manera diferente a las dos rejillas formadas.

Por otro lado, el término $D(\vec{A}_1, \vec{A}_2) \vec{A}_p^*$ no tiene analogo holográfico. El producto escalar de \vec{A}_1 y \vec{A}_2 corresponde a un índice de refracción no lineal, el cual no tiene modulación espacial aunque oscila a una frecuencia 2ω . La onda de prueba interactuante con esta excitación coherente impulsada a 2ω , crea una polarización que resulta en la generación de una onda conjugada E_4 .

La onda reflejada total está dada por la suma coherente de las componentes generadas por cada uno de los 3 términos de la polarización (Ec. 71). La importancia relativa de los 3 términos de la ecuación (71) depende de la naturaleza de la interacción no lineal, de la elección de la polarización para las ondas de prueba y de bombeo, y de la relación entre la polarización de las ondas y el plano que contiene a los vectores \vec{k} de las ondas de prueba y de bombeo.

En medios transparentes no resonantes, para los cuales la interacción no lineal ocurre a través de un efecto Kerr no resonante, todos los términos pueden en general, contribuir. En esta situación todas las constantes $\chi^{(3)}$ son iguales. La importancia relativa de los 3 términos de la Ec. (71) está determinada entonces por las propiedades del medio, el cual especifica los valores relativos de $\chi^{(3)}$ y de D , así por la polarización de las diferentes ondas.

En medios absorbentes, para los cuales la interacción no lineal ocurre como resultado de la absorción saturable o de gradientes térmicos, los primeros dos términos en (71) hacen la contribución dominante. La importancia relativa de estos términos se determina mediante las direcciones de polarización de las diferentes ondas y por cualquiera de los efectos productores del desvanecimiento de la rejilla que este presente.

Finalmente en medios resonantes de 2 fotones el tercer término de la Ec. (71) hace la contribución dominante (Ref. Reintjes capítulo 5 sección 5.2).

Para determinar la amplitud reflejada A_4 producida por la polarización no lineal $p_4^{NL}(\omega, \omega, \omega, -\omega) = \chi^{(3)} E_1 E_2 E_p^*$ partimos de la ecuación de onda con fuente (en unidades CGS)

$$\nabla^2 E = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} p^{NL} \quad (2-3)$$

La cual se reduce, después de aplicar las restricciones normales en óptica no lineal, a:

$$2ik \frac{d}{dz} A = - \frac{4\pi\omega^2}{c^2} p^{NL} e^{-i\Delta kz} \quad (2-13)$$

El desarrollo para obtener esta ecuación se realizó en el capítulo 2, sección 3).

Donde

$$E(r, z, t) = A(r, z) e^{-i(\omega t - k_z z)} + c.c.$$

$$P^{NL}(r, z, t) = P^{NL}(r, z) e^{-i(\omega t - k_z z)} + c.c.$$

$$\Delta k = k_z - k^P$$

Supondremos que el medio es transparente y que todas las ondas están linealmente polarizadas en la misma dirección. También supondremos que el plano conteniendo a los vectores de propagación de las ondas de prueba E_P y de bombeo E_1 es perpendicular al plano que contiene a los vectores de polarización ($\hat{e}_i = \hat{E}_i / |E_i|$ vector de polarización del campo E_i).

Si los cambios de fase no lineales se desprecian, entonces las amplitudes de los campos en el MD40 se describen, utilizando las ecuaciones (2-13) y las polarizaciones de tercer orden $\chi^{(3)}$, por:

$$\frac{d}{dz} A_4 = -i \frac{6\pi^2}{n^3} \chi^{(3)} A_1 A_2 A_F^* \quad (78a)$$

$$\frac{d}{dz} A_P = -i \frac{6\pi^2}{n^3} \chi^{(3)} A_1 A_2 A_4 \quad (78b)$$

$$\frac{d}{dz} A_1 = -i \frac{6\pi^2}{n^3} \chi^{(3)} A_4 A_P A_2^* \quad (78c)$$

$$\frac{d}{dz} A_2 = -i \frac{6\pi^2}{n^3} \chi^{(3)} A_4 A_P A_1^* \quad (78d)$$

Donde $\chi^{(3)} = \chi_{1111}^{(3)}(-\omega, \omega, \omega, -\omega) = C + \frac{1}{2} D$, es la misma susceptibilidad responsable de índice de refracción no lineal.

El requisito de acoplamiento de fase $\Delta k = k_4 - (k_1 - k_2 - k_P) = 0$ (el cual, como hemos visto, es de gran importancia en otras interacciones no lineales) es satisfecho automáticamente por la onda reflejada E_4 en el arreglo de la figura (14) sin considerar al ángulo θ . Esto se logra gracias a que las ondas de bombeo están dirigidas opuestamente ($k_1 = -k_2$) y a que las ondas poseen la misma frecuencia ($k_4 = -k_P$).

Si despreciamos el agotamiento de las ondas de bombeo y suponemos que las amplitudes de dichas ondas son uniformes sobre la longitud de interacción del rayo de prueba, entonces las

soluciones de las ecuaciones (73.a) y (73.b) son:

$$A_p(z) = \frac{A_p(0) \cos \left[K |A_1 A_2| (z - L) \right]}{\cos \left[K |A_1 A_2| L \right]} + i \frac{A_4^*(L) \sin \left[K |A_1 A_2| z \right]}{\sin \left[K |A_1 A_2| L \right]} \quad (74.a)$$

$$A_4(z) = \frac{A_4(L) \cos \left[K |A_1 A_2| z \right]}{\cos \left[K |A_1 A_2| L \right]} - i \frac{A_p^*(0) \sin \left[K |A_1 A_2| (z - L) \right]}{\sin \left[K |A_1 A_2| L \right]} \quad (74.b)$$

Donde $K = 8\pi\lambda/n\lambda$ y L es la longitud de interacción entre los rayos de prueba y de bombeo a lo largo de z .

Las siguientes características pueden resaltar de las soluciones (74.a) y (74.b):

- La onda reflejada A_4 puede generarse aun en ausencia de una señal de entrada para esta onda, i.e., aun si $A_4(L) = 0$.
- Quando no hay entrada de A_4 , la amplitud de la onda reflejada es proporcional al complejo conjugado de la amplitud del rayo de prueba.
- Quando la condición $K |A_1 A_2| = \pi/2$ se satisface, el sistema puede oscilar; produciéndose radiación de los campos E_p y E_4 , incluso en ausencia de señal de entrada en cualquiera de estas ondas.

9.1.a. Amplificación de MD40.

Un sistema de MD40 como el ilustrado en la figura (14) puede actuar como un amplificador de la onda transmitida E_4 si existe al menos la incidencia de una de las ondas A_p o A_4 . Por ejemplo, si $A_4(L) = 0$, entonces las amplitudes de las ondas transmitida y reflejada son:

$$A_p(z) = \frac{A_p(0) \cos \left[K |A_1 A_2| (z - L) \right]}{\cos \left[K |A_1 A_2| L \right]} \quad (75.a)$$

$$A_4(z) = -i \frac{A_p^*(CO) \operatorname{sen} \left[K |A_1 A_2| (z - L) \right]}{\cos \left[K |A_1 A_2| L \right]} \quad (75.b)$$

Bajo estas condiciones el rayo de prueba en la salida de la celda se amplifica con el factor de ganancia de amplitud.

$$G_A = A_p(L) / A_p^*(CO) = \sec \left[K |A_1 A_2| L \right] \quad (76)$$

Mientras la onda reflejada se genera de acuerdo con (75.b) y tiene el valor,

$$A_4(CO) = +i A_p^*(CO) \tan \left[K |A_1 A_2| L \right] \quad (77)$$

a la entrada del medio no lineal. Ambas ondas ganan energía a expensas de la energía de las ondas de bombeo.

9.1.b. Reflexión conjugada.

El interés en el estudio de MD40 con ondas de bombeo contrapropagantes se ha centrado en la generación de ondas conjugadas. Hemos visto como este proceso puede producir una onda reflejada E_1 cuya amplitud es proporcional al complejo conjugado de la amplitud de la onda incidente de prueba, como lo muestra la ecuación (77) (las implicaciones de esta propiedad se discutirán en el siguiente capítulo). Bajo condiciones apropiadas para las soluciones (75.a.) y (75.b) el sistema de MD40 actúa como un espejo conjugado. La reflectividad del espejo, definida como $R = I_4(CO) / I_4(CO)$, es

$$R = \tan^2 \left[K |A_1 A_2| L \right] \quad (78)$$

La reflectividad no está restringida a valores menores o iguales que uno (como sucede en otros efectos no lineales de tercer orden, tal como la dispersión de Brillouin estimulada) y puede exceder la unidad sustancialmente si la interacción es lo suficientemente fuerte. Para estas interacciones la potencia de la onda reflejada estará limitada a un valor comparable al de una de las ondas de bombeo; dejando entonces de ser válida la suposición hecha para obtener las soluciones (75); a saber, que el agotamiento del bombeo es despreciable.

Para los medios transparentes considerados aquí, sujetos a las suposiciones de que el agotamiento del bombeo y los cambios de fase no lineales inducidos por las ondas de bombeo son despreciables, la reflectividad y los coeficientes de ganancia

dependerán sólo del producto $|A_1 A_2|^2$. Para otros sistemas y otras condiciones la dependencia de estas cantidades de las amplitudes de las ondas de bombeo pueden ser más compleja (por ejemplo, en generación de MD40 en medios absorbentes utilizando ondas de bombeo no monocromáticas, que sufran agotamiento).

9.1.c. Oscilación de MD40.

El resultado de la Ec.(77) muestra que cuando la condición

$$K |A_1 A_2| = \pi/2 \quad (79)$$

se satisface, la amplitud de la onda reflejada se va a infinito, implicando oscilación o la presencia de una amplitud a A_4 aun cuando la amplitud de A_p es cero. Similarmente la amplitud $A(L)$ diverge por la misma condición (ver Ec.(75.a)).

La condición mínima de oscilación de (79) es usualmente obtenida para aquellas ondas que son colineales con las ondas de bombeo, y que poseen, por lo tanto, la longitud de interacción mayor.

9.1.d. Polarización.

Otra característica del MD40 que puede tener importantes implicaciones es la polarización de las ondas interactuantes. La manipulación de esta propiedad de las ondas de prueba y de bombeo permite una mejor comprensión del proceso de MD40. Nótese que cada uno de los términos en la expresión (71) de $P_4(\omega)$ involucra un producto escalar de dos campos multiplicada por un tercer campo. Por lo tanto, un término dado contribuirá a la polarización no lineal $P_4(\omega)$ sólo si el término del producto escalar tiene componentes de polarización a lo largo de una dirección común. Este hecho puede explotarse para explorar las propiedades fundamentales del MD40; por ejemplo, al realizar un experimento en el cual E_1 y E_p estén linealmente polarizadas en la misma dirección y E_2 tenga una polarización lineal ortogonal; se observará únicamente la contribución del primer término de $P_4(\omega)$. Luego, con una adecuada selección de las polarizaciones de los campos E_1 , E_2 y E_p se podrán estudiar las contribuciones de los diferentes términos de $P_4(\omega)$ en distintos materiales no lineales (Ref. Reintjes capítulo 5).

9.2. Conjugación de fase por mezclado de 3 ondas.

Considerando un proceso de mezclado de 3 ondas en un cristal no centrosimétrico; para el cual los dos campos ópticos incidentes en el cristal son:

$$\begin{aligned}
 E_1 &= A_1 e^{-i(\omega t - k(\omega)z)} + \text{c.c.} \\
 E_2 &= A_2 e^{-i(2\omega t - k(2\omega)z)} + \text{c.c.}
 \end{aligned}
 \tag{80}$$

Ambos campos inducirán en el cristal una polarización no lineal de la forma:

$$\begin{aligned}
 P^{NL}(z, t) &= 2d A_2 e^{-i(2\omega t - k(2\omega)z)} \left[A_1 e^{-i(\omega t - k(\omega)z)} \right]^M + \text{c.c.} \\
 &= 2d A_2 A_1^M e^{-i(\omega t - (k(2\omega) - k(\omega)z)z)} + \text{c.c.}
 \end{aligned}
 \tag{81}$$

Si $k(2\omega) = 2k(\omega)$, la polarización P^{NL} radiará una onda

$$E_3 \propto d A_1^M A_2 e^{-i(\omega t - k(\omega)z)}$$

la cual, bajo una reflexión convencional desde un espejo plano, llega a ser

$$(E_3)_{\text{refl}} \propto d A_1^M A_2 e^{-i(\omega t + k(\omega)z)}$$

Siendo, por lo tanto, el conjugado complejo del campo original E_1 .

La conjugación de fase mediante mezclado de 3 ondas tiene la desventaja básica de que para lograr una generación eficiente de campos conjugados, es necesario satisfacer la condición de acoplamiento de fase

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

En un cristal esta condición sólo puede satisfacerse exactamente en una dirección. Esto produce una limitación seria en la divergencia angular del rayo incidente, limitando la cantidad de información o de distorsión que puede conjugarse o corregirse.

9.3. Observaciones experimentales de la conjugación de fase.

La primera observación experimental de la conjugación de fase fue realizada en 1972 por Zel'dovich, Nosach y colaboradores. Ellos generaron una onda conjugada mediante dispersión de Brillouin estimulada, la cual permitió eliminar la distorsión de propagación. Posteriormente en 1978 Yariv propuso y analizó la producción de ondas conjugadas mediante mezclado de 3 ondas para vencer la "pérdida" de imagen por dispersión de fase modal que aparecía en fibras ópticas multimodo y en holografía de tiempo real.

En 1977 Hellwarth sugirió al MD40 como un proceso atractivo para crear conjugación de fase, puesto que carecía del problema de acoplamiento de fase inherente en los procesos de 3 ondas. Por otra parte, Yariv y Pepper (1977) mostraron que el proceso de MD40 para conjugación de fase era también capaz de amplificar tanto a la onda incidente como a su onda conjugada; permitiendo la oscilación sin espejos de ambas ondas a partir de cierta intensidad umbral de los rayos de bombeo.

Las primeras observaciones de la conjugación de fase por MD40 fueron reportadas por Jensen y Hellwarth (1979) y por Bloom y Bjorklund (1977). Ambos equipos usaron CS_2 como medio no lineal.

En 1978 Bloom, Liao y Economou, y Pepper, Fekete y Yariv observaron experimentalmente oscilación y amplificación paramétrica en MD40. Ese mismo año Wang y Giuliano demostraron la habilidad del proceso de dispersión de Brillouin estimulada para reconstruir altas frecuencias espaciales.

En 1977 la conjugación de fase óptica y la reconstrucción de imágenes mediante dispersión Paman estimulada fue lograda por Zel'dovich y colaboradores. Por su parte Avizonis et al demostraron en 1977 la conjugación de fase por mezclado de 3 ondas en cristales.

10. Efecto electro-óptico cuadrático (Kerr).

Hemos mencionado en la introducción del capítulo 3 que las características de propagación de la radiación electromagnética en cristales cambia cuando un campo eléctrico de corriente directa E se aplica al cristal. Siendo caracterizados estos cambios especificando las variaciones en las constantes $(1/n^2)$, que aparecen en la elipsoide indicial de la ecuación (3-1).

En cristales no centrosimétricos, es el efecto electro-óptico lineal el que trata las variaciones lineales de los coeficientes $(1/n^2)$ con los campos eléctricos, a través de la relación

$$\Delta \left[\frac{1}{n^2} \right]_i = r_{ij} E_j \quad (3-2)$$

Donde r_{ij} es el tensor electro-óptico y $\Delta(1/n^2)_i$ es el cambio en la constante $(1/n^2)_i$ (sumándose sobre índices repetidos).

En cristales centrosimétricos el efecto electro-óptico lineal se anula. En este caso el término dominante que describe la dependencia de las constantes de la elipsoide indicial respecto al campo eléctrico aplicado \vec{E} es el término cuadrático. La dependencia de las constantes de la elipsoide indicial del campo eléctrico aplicado puede escribirse entonces como:

$$\Delta \left[\frac{1}{n^2} \right]_i = h_{ijkl} E_k E_l \quad (3-3)$$

Donde $(1/n^2)_{ij}$ es el coeficiente del término $x_i x_j$ en la ecuación (3-1).

El tensor electro-óptico cuadrático h_{ijkl} se encuentra relacionado con la susceptibilidad de tercer orden $\chi^{(3)}(-\omega, 0, 0, \omega)$. Algunos de los mejores materiales electro-ópticos cuadráticos son ferroeléctricos (por ejemplo BaTiO_3 , CrTiO_3 , KTaO_3 , KTaNbO_3 , etc.) operando arriba de su temperatura de Curie (Ref. 93 capítulo 18 p. 107).

Capítulo 8. APLICACIONES.

Contenido.

1. Introducción.....	171
2. Generación no lineal de campos de radiación.....	171
2.1. Aplicaciones de la conjugación de fase.....	171
2.1.1. Corrección de las distorsiones de fase.....	171
2.1.2. Reconstrucción holográfica de imágenes.....	177
2.1.3. Resonadores con espejos conjugados de fase.....	179
2.2. Conversión ascendente infrarroja.....	190
2.3. Amplificación y oscilación paramétrica óptica.....	182
2.4. Mezclado Raman coherente.....	187
2.5. Medición de frecuencia de radiación.....	199
3. Estudio de materiales.....	191
3.1. Espectroscopia no lineal.....	192
3.1.1. Espectroscopia Raman coherente.....	193
3.1.1.a. Espectroscopia Raman anti-Stokes coherente (CARS).....	198

1. Introducción.

Las interacciones no lineales pueden utilizarse en varios tipos de aplicaciones en las cuales el énfasis puede dividirse en 4 categorías.

- 1) Generación no lineal de campos de radiación a la misma frecuencia que los campos incidentes o a una frecuencia diferente.
- 2) Estudio de materiales en los cuales las interacciones no lineales se utilizan como una herramienta de diagnóstico para obtener información respecto de las propiedades no lineales del medio.
- 3) En el control de rayos láser con el fin de incrementar su energía manteniendo la calidad del rayo cercana al límite de difracción.
- 4) En diferentes aplicaciones instrumentales en las cuales las interacciones no lineales se emplean para manipular la transferencia de información.

Tratar de discutir cada una de las aplicaciones que forman estas categorías resulta imposible en una monografía introductoria a la óptica no lineal. Por lo tanto, la idea seguida en este capítulo será la de presentar algunos ejemplos de los posibles usos de la óptica no lineal. Teniendo en mente que ellas solo son una parte de un grupo más amplio, amón de las nuevas y diferentes aplicaciones que resulten en el futuro.

2. Generación no lineal de campos de radiación.

2.1. Aplicaciones de conjugación de fase.

2.1.1. Corrección de distorsiones de fase.

Una de las más importantes aplicaciones de las ondas conjugadas de fase es la corrección de distorsiones de fase de un rayo óptico. Tales distorsiones pueden ocurrir, por ejemplo, como resultado de la propagación a través de componentes ópticas distorsionantes, medios no ideales, no lineales, o fibras multimodo.

Para explicar la corrección de distorsiones de fase mediante conjugación supongamos que una onda de amplitud $A_r(r, z)$ se propaga a través de un medio distorsionante de izquierda a derecha, como lo ilustra la figura (1). Donde tal medio posee una constante dieléctrica que es función de la posición. La ecuación que describe la propagación de la onda incidente es:

$$\nabla_{\perp}^2 A_R + \left[\epsilon(r,z) \frac{\omega^2}{c^2} - k^2 \right] A_R + 2ik \frac{\partial}{\partial z} A_R = 0 \quad (1)$$

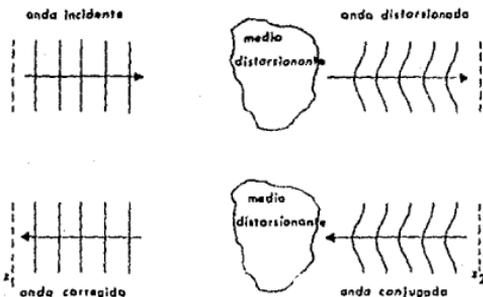


FIG. 1. DIAGRAMA ESQUEMATICO ILUSTRANDO LA CORRECCION DE DISTORSIONES DE FASE CON REFLEJION CONJUGADA. UNA ONDA PLANA, PROPAGANDOSE DE IZQUIERDA A DERECHA, ESTA INCIDIENDO SOBRE UN MEDIO DISTORSIONANTE. DESPUES DE PASAR A TRAVES DEL MEDIO DISTORSIONANTE ES REFLEJADA POR UN ESPEJO CONJUGADO, Y EL SENTIDO DE LAS DISTORSIONES DE FASE SE INVIERTE CON RELACION A LA DIRECCION DE PROPAGACION (FIGURA INFERIOR). DESPUES DE PROPAGARSE A TRAVES DEL MISMO MEDIO DE DERECHA A IZQUIERDA LOS FRENTES DE ONDA DEL RAYO SON OTRA VEZ PLANOS.

Consideremos ahora una onda A_L , propagándose de derecha a izquierda a través del mismo medio, la cual se describe por la ecuación:

$$\nabla_{\perp}^2 A_L + \left[\epsilon(r,z) \frac{\omega^2}{c^2} - k^2 \right] A_L - 2ik \frac{\partial}{\partial z} A_L = 0 \quad (2)$$

Si $\epsilon(r,z)$ es real, entonces la ecuación (2) tiene la forma del complejo conjugado de la ecuación (1). Por lo tanto, si la onda viajando de izquierda a derecha se genera con una amplitud que es el conjugado de la amplitud de la onda viajando de derecha a izquierda desde un plano $z = z_2$ a la derecha del medio distorsionante, tal como lo muestra la figura (1) (i.e., $A_L(r,z) = A_R^*(r,z)$), entonces la variación transversal de la onda

A_L en un plano arbitrario z será el complejo conjugado de la variación espacial de la onda incidente en el mismo plano, i.e., $A_L(r,z) = A_R^*(r,z)$. En particular si la onda incidente tiene un frente de onda plano o un frente de onda esférico simple en un plano z_1 a la izquierda del medio distorsionante, entonces la onda conjugada también tendrá un frente de onda plano o esférico en la posición z_1 , a pesar de las distorsiones impuestas por el medio.

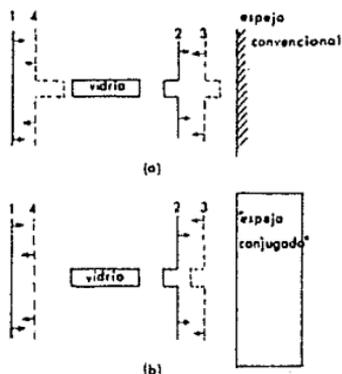


FIG. 2. USO DE UN SISTEMA SIMPLE PARA ILUSTRAR LA CORRECCION DE DISTORSIONES DE FASE CON UN REFLECTOR CONJUGADO.
 PARTE SUPERIOR. LA DISTORSION DE FASE EN EL CENTRO DEL DEL RAYO SE DUPLICA DESPUES DE LA REFLEXION A PARTIR DE UN ESPEJO CONVENCIONAL.
 PARTE INFERIOR: LA DISTORSION DE FASE DEL RAYO SE REMUEVE DESPUES DE LA REFLEXION A PARTIR DE UN RAYO CONJUGADO.
 (REF. REINTJES P. 401).

Esta corrección de las distorsiones se ilustra por un sistema descrito en la Fig.(2), donde una placa de planos paralelos se introduce en una porción del camino de la onda incidente, causando un "retraso de fase" en una parte del frente de onda. En la reflexión en el espejo conjugado el sentido del disturbio de fase se invierte, creando un "avance". Después de atravesar por segunda vez el medio distorsionante la parte distorsionada del rayo sufrirá otro "retraso" de fase, lo que producirá finalmente

un frente de onda plano en la salida.

El arreglo utilizado en la figura (2) (parte inferior) para corregir distorsiones de fase mediante conjugación, es llamado "geometría de doble paso".

Como comparación también se muestra la reflexión que sufre la misma onda incidiendo en un espejo plano. En esta situación el sentido del disturbio de fase no cambia mediante la reflexión. Por lo tanto, la distorsión de fase se duplica cuando la onda atraviesa por segunda vez el medio distorsionante.

Conceptualmente puede pensarse que el espejo conjugado posee un contorno igual al frente de fase de la onda de prueba. La forma apropiada del espejo para la situación descrita en la figura (2) se ilustra en la figura (3)

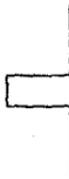


FIG. 3. FORMA DEL ESPEJO CONJUGADO PARA EL SISTEMA DE LA FIGURA (2).

Quizá un ejemplo más familiar de un espejo conjugado sea el de un espejo esférico colocado frente a una onda esférica, de tal manera que la curvatura del espejo iguale a la curvatura de la onda. En esta situación el rayo incidente se enfocará de nuevo en el punto desde el cual divergió. Para contornos de fase más complicados la curvatura del espejo debe ajustarse de tal manera que iguale a la curvatura del rayo en cualquier punto. Como se señaló en la sección (9.1) el proceso de conjugación de fase por mezclado degenerado de 4 ondas (abreviado MD4O) se considera como una reflexión producida por una rejilla formada mediante la interferencia de las ondas de prueba y de bombeo. Cuando la onda de prueba transporta distorsiones de fase, los contornos de la rejilla se distorsionan para igualarlos. Esta situación se ilustra en la figura (4) para la distorsión de la figura (2). Puede verse que el contorno de la rejilla que refleja al segundo rayo de bombeo tiene exactamente la forma del espejo conjugado conceptual de la figura (3).

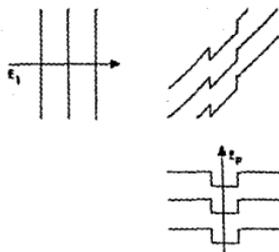


FIG. 4. FORMACION DE LOS CONTORNOS EN LA REJILLA DINAMICA QUE PROPORCIONAN LA REFLEXION CONJUGADA PARA EL SISTEMA DE LA FIGURA (2).

Si la constante dieléctrica del medio distorsionante es compleja, entonces la identificación del conjugado de la ecuación (1) con la ecuación que describe la propagación de una onda moviéndose hacia "atrás" no será exacta, aun en principio. Esto significa, por ejemplo, que la corrección de las distorsiones en medios que muestran pérdida o ganancia, tales como amplificadores láser, no será en general exacta, aun en principio.

La saturación de la ganancia en amplificadores puede también degradar la corrección de la fidelidad. Bajo algunas circunstancias, de cualquier manera, la corrección del frente de onda en medios distorsionantes con ganancia o pérdida puede esperarse. Intuitivamente, se puede suponer; por ejemplo, que la corrección de las distorsiones en medios con ganancia o pérdida lineal que este distribuida uniformemente a través del perfil del rayo debe ser posible con sólo un cambio uniforme en la amplitud de la onda reflejada. Kochemasov y Nikolaev han hecho un análisis donde muestran que la corrección del frente de onda debe ser posible en amplificadores láser que actúen como una lente delgada. Experimentalmente, la corrección del frente de onda ha sido demostrada con amplificadores de rubi (Nosach et al), Nd:vidrio (Basov et al), Nd:YAG (Zubarev et al), y KrF (Gower) (Ref. Reintjes capítulo 8 sección 8.4.1).

Por otra parte, un ejemplo donde se aplica la "la geometría de doble paso" para eliminar las distorsiones se presenta en

El efecto de la reflexión en un medio más denso que el incidente produce un rayo reflejado que se aleja de la normal y un rayo refractado que se acerca a la normal. En un medio más denso que el incidente, el ángulo de reflexión es mayor que el ángulo de incidencia y el ángulo de refracción es menor que el ángulo de incidencia.



FIGURA 3.1. DISEÑO DE UN LÁSER DE RAYO PASO EN UN MEDIO MÁS DENSO QUE EL INCIDENTE. EL RAYO PASO SE ALEJA DE LA NORMAL Y EL RAYO REFLECTADO SE ALCERCA A LA NORMAL. LA REFLEXIÓN SE ALCERCA AL MÁXIMO EN EL RAYO A TRAVÉS DE UN MEDIO MÁS DENSO QUE EL INCIDENTE.

FIGURA 3.2. GEOMETRÍA DE DOBLE PASO PARA CONCENTRAR LA RADIACIÓN.

Cuando el rayo pasa a través del amplificador "corrector" a las moléculas liberando esta energía como radiación de paso inverso es producido pero a costa de la direccionalidad. Inconvenientemente en el medio amplificador distorsionan el rayo produciendo la divergencia de este. Las distorsiones pueden eliminarse si un espejo conjugado de fase se coloca al final del amplificador receptor del rayo. Después de ser conjugado por el espejo, el rayo viaja de nuevo a través del amplificador, su momento que es el inverso del rayo original anula los efectos degradantes del medio. El rayo de paso doble que converge tendrá así, alta potencia y gran direccionalidad.

También con la geometría de doble paso puede lograrse un efecto de auto-puntamento de la radiación aplicada en función

láser. El auto-apuntamiento proporciona una forma de calentar pequeños objetos, cuya área podría ser tan pequeña como una millonésima del área de la sección transversal del rayo láser utilizado, sin recurrir a sistemas complicados de lentes, espejos y otros elementos ópticos. En el futuro podría explotarse esta técnica para calentar plasmas densos y de ahí iniciar la fusión termonuclear.

2.1.2. Reconstrucción holográfica de imágenes.

El MD40 también puede utilizarse en la reconstrucción holográfica de imágenes de tiempo real. Para entender esta aplicación consideremos la analogía hecha en la sección (9.1) del capítulo anterior entre el MD40 y el proceso holográfico usual, en el cual el MD40 se interpreta físicamente como una reflexión producida por una rejilla dinámica. Bajo esta descripción el rayo de prueba y uno de los rayos de bombeo interfieren para formar un holograma dinámico en el medio no lineal. El segundo rayo de bombeo, como sabemos, sirve como un rayo de lectura. Una imagen holográfica de tiempo real será formada en el rayo reflejado de cualquier estructura que este presente en el rayo de prueba incidente. La imagen se formará a una distancia del espejo conjugado igual al espacio que dista el objeto colocado en el rayo de prueba a dicho espejo; como lo muestra la figura (8).

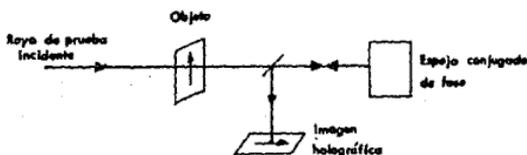


FIG. 8. ILUSTRACION ESQUEMATICA DE LA FORMACION DE IMAGEN HOLOGRAFICA.

Este proceso es un caso especial de una técnica más general para holografía de tiempo real usando mezclado de cuatro ondas, en la cual el rayo de lectura podría tener una frecuencia diferente a la de los rayos que forman el holograma. En el caso general la imagen se formará si el ángulo del rayo de lectura se ajusta al ángulo de dispersión de Bragg de la rejilla dinámica

formada por los otros dos rayos. La amplificación o reducción de la imagen ocurrirá dependiendo de las longitudes de onda relativas de los rayos de lectura y de bombeo. Nótese que en esta técnica ninguna lente se utiliza. Muchos de los primeros experimentos de MD40 fueron dirigidos hacia la observación de imágenes holográficas. Yariv ha hecho un análisis teórico de las propiedades de la holografía de tiempo real por MD40. Por otro lado, usando esta técnica Levenson ha obtenido imágenes con una resolución de 500 l/mm con una iluminación de $\lambda = 514.5 \text{ nm}$, de un láser de argón, correspondiente a una apertura de 0.48 (Ref. Reintjes capítulo 5).

3.1.3. Resonadores con espejos conjugados de fase.

El uso de los espejos conjugados de fase (abreviado ECF) en resonadores láser ha sido discutido por muchos investigadores. Un ejemplo de una cavidad de este tipo, usando un espejo normal y un ECF se muestra esquemáticamente en la figura (7).

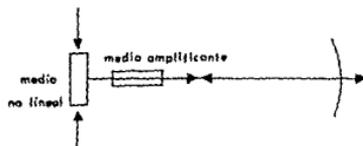


FIG. 7. DIAGRAMA ESQUEMATICO DE UNA CAVIDAD LASER CON UN ESPEJO CONJUGADO DE FASE.

Lo atractivo del arreglo anterior radica en que la cavidad puede auto-alinearse y el ECF puede corregir las distorsiones causadas por el medio amplificante o por la óptica en la cavidad. Por lo que respecta a la estructura modal de este resonador, se observa que cuando el ECF es operado en degeneración exacta (MD40) la frecuencia oscilante se determina sólo por la frecuencia de las ondas de bombeo y no por la longitud de la cavidad. Esta carencia de estructura modal longitudinal en degeneración exacta ocurre debido a que el cambio de fase acumulado durante el viaje de ida a través de la cavidad se resta del cambio de fase durante el viaje de regreso, esto como resultado de la inversión de fase en el ECF. El cambio de fase durante el viaje redondo es por consiguiente independiente de la frecuencia de radiación y de la longitud de la cavidad. La carencia de modos longitudinales permite a la cavidad ser operada

en una sola frecuencia sin las complicaciones de saltos modales. Si la frecuencia de las ondas de bombeo se sintoniza, entonces la frecuencia del resonador de ECF también se sintonizará continuamente sin estructura modal.

Bajo una anchura de banda angosta del ECF es posible obtener sólo operación degenerada bajo ciertas condiciones usualmente fáciles de cumplir. Si el ancho de banda es grande, ya sea a causa de una desintonía de la resonancia atómica o por la saturación de la reflectividad del MD40 todavía es posible alcanzar la operación no degenerada del ECF. Bajo estas condiciones la cavidad contendrá una estructura modal longitudinal debido al acoplamiento de la radiación a ω_{bombeo} . Lo cual ocurre en modo no degenerado de frecuencia. La estructura modal estará centrada en la frecuencia de bombeo y cada modo consistirá de radiación a un par de frecuencias $\omega_{\text{bombeo}} \pm \nu$. El espaciado de las frecuencias de las componentes de los modos a cualquier lado de la frecuencia de bombeo es la mitad del espaciado de los modos en una cavidad con reflectores normales.

La estructura modal transversal de una cavidad con ECF ha sido también investigada. Se ha demostrado que cualquier distribución de intensidades con una curvatura que iguale a la curvatura del espejo normal es un modo de una cavidad con un ECF y una dimensión transversal infinita. Además, todos los modos transversales son degenerados en frecuencia. Cuando la cavidad tiene una extensión transversal finita, ya sea debido a un diámetro finito del espejo o a una apertura intracavidad finita, el modo de menor orden llegará a ser un modo Gaussiano bien definido con su diámetro determinado por la geometría de la cavidad.

Los efectos de aberración de fase sobre la calidad del rayo de salida han sido analizados por Hardy (Ref. Reintjes p. 401). Sus cálculos muestran que un ECF de un diámetro dado puede prevenir la degradación del patrón del campo lejano de la salida del resonador, a condición de que la aberración de fase no sea demasiado grande. Alguna pérdida en la corrección se predice para grandes aberraciones de fase y se atribuye a la difracción de rayos aberrados alrededor del ECF. Aun con esta pérdida de la corrección, mejoras sustanciales en la intensidad del campo lejano se predicen para la mayoría de los sistemas que usualmente usan espejos normales.

Resonadores formados por ECF han sido investigados experimentalmente por Feinberg y Hellwarth y por Lind et al. Feinberg y Hellwarth utilizaron un arreglo en el cual la ganancia de la cavidad fue proporcionado por el ECF. Ellos mostraron que las aberraciones debido a la óptica intracavidad podían corregirse en el rayo de salida. Lind et al usaron un medio amplificante separado en una cavidad similar a la mostrada en la Fig.(7). Ellos investigaron la estructura modal longitudinal bajo condiciones degeneradas y casi degeneradas, encontrando resultados que están de acuerdo con la teoría. Ellos también demostraron la corrección de aberraciones en el rayo de salida (Ref. Reintjes capítulo 5).

Una discusión de la calidad de la corrección de fase espacial y de la corrección de fase temporal realizadas por conjugación de fase puede encontrarse en Reintjes capítulo 5.

Por otro lado, algunas posibles aplicaciones del MD40 en el procesamiento de señal sobre las cuales actualmente se trabaja son: Transmisión de imágenes en un solo sentido; sistemas de reconocimiento de patrones visuales con el objeto de descubrir el funcionamiento de los circuitos neurales para su aplicación en computación (computadoras neurales ópticas Ref.1); filtros de banda angosta conjugados de fase para utilizarse en satélites y otros sistemas de comunicación; construcción de sistemas inversores de secuencia de pulsos con posible aplicación en investigación de fusión nuclear; fabricación de elementos ópticos lógicos que formarán parte en el futuro de las computadoras ópticas; convolución y correlación de campos ópticos incidentes por MD40.

Para concluir, es posible utilizar también el MD40 en espectroscopia, con el objeto de estudiar la interacción de la radiación con la materia. La aplicación de esta técnica a medios no lineales tales como vapores atómicos, aerosoles, cristales fotorrefractivos y materiales orgánicos proporciona otra fuente de información detallada de los procesos mecánico cuánticos y atómico fundamentales (Reintjes capítulo 5 y Refs. 76, 65, 39, 1,3).

2.2. Conversion ascendente infrarroja.

La conversión ascendente es un caso especial de la generación de frecuencia suma. Su característica esencial reside en las condiciones iniciales impuestas para resolver las ecuaciones acopladas (3-31). En un proceso de conversión ascendente una frecuencia ω_3 es generada por la suma de dos fuentes a ω_1 y ω_2 . Supongamos que la potencia a la frecuencia ω_2 es mucho mayor que la potencia ω_1 , además de considerar inicialmente a la potencia de ω_3 igual a cero.

Aplicando la primera condición a las ecuaciones acopladas (3-31); expresada como $\frac{\partial E}{\partial z} = 0$, junto con la condición de acoplamiento de fase; es posible obtener una solución particularmente simple, a saber:

$$E_3(z) = \left[\frac{\omega_3^2 k_1}{\omega_1^2 k_3} \right]^{1/2} E_1(0) \sin \frac{z}{l_{ca}} \quad (2)$$

$$E_1(z) = E_1(0) \cos \frac{z}{l_{ca}} \quad (3)$$

Nótese que la potencia a la frecuencia ω_1 es transferida totalmente al rayo de frecuencia suma ω_3 después de una longitud característica $l_{ca} \sqrt{2}$, donde l_{ca} está dada por la relación:

$$l_{ca} = \left\{ \frac{4\pi d}{c^2} \left[\frac{\omega_2^2 \omega_3^2}{k_1 k_3} \right]^{1/2} \right\}^{-1} \quad (4)$$

Si se permite que la interacción continúe (i.e., si el cristal es lo suficientemente largo) la potencia es transferida de ω_1 a ω_3 y de ω_3 a ω_1 ciclicamente cada distancia $l_{ca} \sqrt{2}$. En principio, por consiguiente, tenemos un medio para cambiar frecuencia de radiación con alta eficiencia, a condición de que se pueda igualar o comparar físicamente la distancia l_{ca} con las longitudes cristalinas disponibles.

El cambio de frecuencia radiante de una región del espectro a otra puede facilitar la detección de la radiación a ω_1 . Esta aplicación se encuentra, por ejemplo, en la conversión de radiación infrarroja (IR) al visible, donde los detectores son mucho más rápidos y sensibles.

En la actualidad se dispone de detectores de radiación visible de gran eficiencia, tales como el ojo humano o los fotomultiplicadores; mientras que la mayoría de los detectores IR son comparativamente muy ineficientes. Por ejemplo, es posible detectar algunos cuantos por segundo a 5,000 Å (verde), pero a 10 μ m el requisito usual para la detección es aproximadamente de 10⁸ cuantos/sec. Por lo tanto, si fuera posible convertir IR a visible, aun con una eficiencia relativamente baja, se esperaría obtener un detector IR más sensible que los utilizados comúnmente.

Una segunda característica atractiva de este método para detectar radiación IR es que el cristal convertidor ascendente, el láser de bombeo (ω_2), y el fotomultiplicador todos operan normalmente a temperatura ambiente, 300°K; mientras que los detectores competitivos en el IR comúnmente operan entre 4.2 y 77°K.

Esta técnica de conversión ascendente IR ya ha sido aplicada. Por ejemplo, Smith y Mahr reportaron la construcción de un detector con potencia equivalente de ruido de 10⁻¹⁴ w convirtiendo radiación de 3.5 μ m a 0.447 μ m en LiNbO₃ usando como fuente de bombeo un láser Ión-Argón. El detector se utilizó en Astronomía IR. Otra aplicación de este proceso ha sido la conversión ascendente de imágenes IR. Resolución hasta de 300 líneas ha sido realizada; pero a costa de la eficiencia en la conversión.

Naturalmente el énfasis primario en las aplicaciones de la conversión ascendente IR es obtener cualquier información que sea

transportada por la onda infrarroja, tal como imágenes o espectros de algún material. Por lo tanto, una reproducción justa en el visible de la radiación IR con respecto a variaciones temporales, espaciales o espectrales, es importante.

El agotamiento en la fuente de bombeo puede producir distorsión de la información en la señal convertida. Para evitar lo anterior, es necesario disponer de una onda de bombeo intensa, comparada con la onda infrarroja, que nunca sufra agotamiento durante el proceso de conversión ascendente.

Una propiedad importante de la conversión ascendente IR puede derivarse al aplicar las relaciones de Manley-Rowe (sección 3-10) a los campos ω_1 y ω_3 .

$$N_1 \dot{C}D + N_3 \dot{C}D = N_1 C\dot{D}$$

y a los campos ω_1 y ω_2

$$N_3 \dot{C}D + N_2 \dot{C}D = N_2 C\dot{D}$$

Donde N_i es el flujo fotónico a ω_i .

Las relaciones anteriores muestran que la generación de un fotón a la frecuencia suma ω_3 está acompañada por la aniquilación de un cuanto a la frecuencia infrarroja (ω_1) y un cuanto a la frecuencia de bombeo (ω_2). Por consiguiente, podemos concluir que ninguna frecuencia suma o cuanto visible puede generarse en ausencia de cuantos IR (i.e., no hay emisión espontánea en un proceso conversión ascendente). Este resultado contrasta con un proceso de generación (amplificación) paramétrica, donde la emisión espontánea es importante.

Un análisis del proceso de conversión ascendente IR producido por mezclado de frecuencia suma puede encontrarse en Zernike y Midwinter capítulo 6.

Cabe mencionar que el proceso de conversión ascendente puede también obtenerse con mezclado de 4 ondas y holografía dinámica. Ejemplos de aplicaciones de conversión ascendente de imágenes IR y de espectroscopia IR resuelta temporalmente, ambas obtenidas a través de estos procesos, pueden consultarse en Reintjes capítulo 6.

(Sección basada en Ref. 96 capítulo 6, Ref. 93 capítulo 22 y Ref. 41 capítulo 2).

2.3. Amplificación y oscilación paramétricas ópticas.

En la sección anterior se apuntó que el convertidor paramétrico óptico es un caso especial de la generación de frecuencia suma. Similarmente, el amplificador paramétrico y el oscilador paramétrico son casos especiales del mezclado de frecuencia diferencia.

De las relaciones de Manley-Rowe (sección 3-10) sabemos que en la generación de frecuencia el fotón con más alta frecuencia ω_3

se divide en dos fotones de menor frecuencia ω_1 y ω_2 tal que $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. La energía extraída del rayo de mayor frecuencia alimenta a los dos rayos de menor frecuencia. Consecuentemente el proceso puede usarse como un amplificador: Una señal débil ω_1 se hace interactuar con una fuerte, el bombeo ω_3 de mayor frecuencia, y ambas, la frecuencia generada diferencia $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ generada (conocida como la "intermedia") y la señal original ω_1 , son amplificadas. Si las señales amplificada e intermedia se les hace pasar de nuevo a través del cristal mezclador, con una fase apropiada, ambas serán nuevamente amplificadas. En caso de que solo una pasara de nuevo a través del cristal con una fase apropiada, todavía se obtendría una ganancia para ambas. Por lo tanto, el amplificador puede formar un oscilador añadiendo la retroalimentación apropiada (i.e., un resonador) para ambas ondas "señal" e "intermedia", o para solo una. Si la ganancia por paso es mayor que la pérdida por paso, la señal puede construirse a partir del ruido, oscilando así el sistema.

Si ambas ondas señal e intermedia resuenan, el sistema tendrá, por supuesto, un umbral más bajo de oscilación que cuando uno solo de ellas lo hace.

Notese que las denominaciones "señal" e "intermedia" tienen significado específico solo para el amplificador. En el oscilador, cualquiera de las dos frecuencias menores puede llamarse señal o intermedia.

Para derivar de manera más precisa las características del amplificador y el oscilador paramétrico a frecuencias ópticas regresemos a las tres ecuaciones de amplitud acopladas (3-31)

$$\frac{\partial A_3}{\partial z} = 0 \quad (6)$$

$$\frac{\partial A_1}{\partial z} = -\chi_1 A_3 A_2^* e^{i\Delta kz} \quad (6)$$

$$\frac{\partial A_2}{\partial z} = -\chi_2 A_3 A_1^* e^{i\Delta kz} \quad (7)$$

$$\text{Donde } \chi_j = \frac{8\pi\omega_j^2 d}{k_j \epsilon^2}$$

El acoplamiento a cero en la ecuación (6) se debe al hecho de considerar al rayo de bombeo de gran potencia con una frecuencia igual a ω_3 .

Diferenciando la Ec.(6) de nuevo con respecto a z y utilizando la Ec.(7) obtenemos una ecuación de segundo orden, la cual para $\Delta k=0$ tiene la solución general:

$$\xi_2(z) = \xi_2(0) \cosh \frac{1}{l_{op}} + \left[\frac{\omega_1^2 k_2}{\omega_2^2 k_1} \right]^2 \xi_1(0) \sinh \frac{1}{l_{op}}$$

El mismo resultado se obtiene para ξ_1 intercambiando los subíndices. Es interesante comparar esta solución con la solución del convertidor ascendente paramétrico (Ecs. 2 y 3), donde se encontró una dependencia seno y coseno. La razón física de la diferencia en las soluciones reside en que la generación paramétrica es un proceso con ganancia, mientras que el mezclado de frecuencia suma no lo es. La cantidad l_{sp} está dada por la relación.

$$l_{sp} = \sqrt{n_1 n_2 \lambda_1 \lambda_2 \Delta n d^2} \quad (8)$$

Para l grande la solución llega a ser:

$$\xi_2 = \left[\xi_2(0) + \left[\frac{\omega_1^2 k_2}{\omega_2^2 k_1} \right]^{1/2} \xi_1(0) \right] e^{(l-1)g}$$

Y se tiene un coeficiente de ganancia $g = 1/l_{sp}$.

Por lo tanto, existen 2 conjuntos diferentes de soluciones. Si l es del mismo orden de magnitud que l_{sp} , el cual corresponde al caso de amplificación paramétrica, la solución es:

$$\xi_2(l) = \xi_2(0) \cosh(gl) \quad \text{real} \quad (9)$$

$$\xi_1(l) = \xi_2(0) \left[\frac{\omega_1^2 k_2}{\omega_2^2 k_1} \right]^{1/2} \sinh(gl) \quad \text{intermedia} \quad (10)$$

En el caso del oscilador, donde l es grande, puesto que las ondas ω_1 y ω_2 atraviesan muchas veces el cristal se encuentra una oscilación de la forma:

$$\xi_2(l) = \xi_2(0) e^{gl} \quad (11)$$

$$\xi_1(l) = \xi_2(0) \left[\frac{\omega_1^2 k_2}{\omega_2^2 k_1} \right]^{1/2} e^{gl} \quad (12)$$

Luego para $gl \ll 1$ la onda del amplificador crece como $1 + (gl)^2/2$ y la del oscilador crece como $1 + gl$. Las ganancias de potencia incremental son, por consiguiente, proporcionales a $(gl)^2/2$ y a gl , respectivamente, esto significa, para g pequeña, que el oscilador puede tener la ganancia suficiente para vencer las pérdidas en un viaje redondo, situación en la cual el amplificador de un solo paso mostraría una ganancia de potencia despreciable.

Puesto que gl es casi siempre pequeña, el amplificador paramétrico tiene pocas aplicaciones prácticas a frecuencias ópticas.

Sabemos que la condición de oscilación del amplificador ocurre

cuando la ganancia es mayor que las pérdidas. Si la retroalimentación es proporcionada por un resonador de alta Q el cual posee espejos de reflectividad $R_1, R_2 \approx 1$, entonces se requiere que $gL > 1 - R$ para iniciar la oscilación (donde L es la longitud del cristal). No obstante, a menos de que se tenga gran cuidado, las pérdidas normalmente son mayores que $1 - R$; debido a las imperfecciones en el cristal; a la difracción y a la absorción.

La amplificación paramétrica en la región óptica fue primero demostrada por Wang y Racette, quienes usaron un cristal ADP. La oscilación paramétrica fue primero reportada por Giordmaine y Miller, ellos utilizaron un cristal LiNbO_3 bombeado por el segundo armónico de un láser $\text{CaWO}_4:\text{Nd}^{3+}$ a $0.529 \mu\text{m}$. La oscilación se obtuvo en las longitudes de onda "señal" e "intermedia" alrededor de un $1 \mu\text{m}$. El arreglo utilizado se muestra en la Fig. (8). El LiNbO_3 tiene un coeficiente electro-óptico $d_{311} \approx 1.43 \times 10^{-8}$ es y es mayor que los coeficientes d_{312} de los

cristales KDP y ADP por un factor de ≈ 11 .

Giordmaine y Miller sintonizaron las frecuencias ω_1 y ω_2 variando la temperatura del cristal. Esto debido a la dependencia del índice de refracción y de la birrefringencia de la temperatura. A una determinada temperatura sólo un par único de frecuencias ω_1 y ω_2 (con $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$) satisfacen la condición de acoplamiento de fase $k_1 + k_2 = k_3$ (o $\omega_1 n_1 = \omega_2 n_2 + \omega_3 n_3$). Esto permite que únicamente para estas frecuencias la ganancia sea máxima, despreciando la oscilación para cualquier otro par. Al variar la temperatura el índice n_i cambia, y siendo $k_i = \omega_i n_i / c$, esto implica la satisfacción del acoplamiento de fase para un nuevo par de frecuencias ω_1 y ω_2 , con los correspondientes efectos para la ganancia.

Puesto que los índices n_1 , n_2 y n_3 en el cristal también dependen de la orientación del cristal (para el rayo extraordinario); del campo eléctrico; del campo magnético y de la presión. El control de cualquiera de estas variables puede también usarse para sintonizar las frecuencias de salida ω_1 y ω_2 del oscilador paramétrico.

Se ha mencionado que la diferencia de fase $\Delta k \neq 0$ afecta la ganancia en un oscilador; esto se puede verificar al sustituir en las ecuaciones (6) y (7) los campos:

$$A_1(z) = A_1(0) e^{sz + i\Delta k z/2}$$

$$A_2(z) = A_2^*(0) e^{sz - i\Delta k z/2}$$

Encontrándose

$$s^2 + \left(\frac{\Delta k}{2}\right)^2 = \frac{(Bnd)^2 \omega_1^2 \omega_2^2}{c^4 k_1 k_2} A_3(O) A_3^*(O) \quad (13)$$

De las ecuaciones (13) y (8) se encuentra s ; la ganancia efectiva.

$$s = g - \Delta k/2$$

Por lo tanto se concluye que la presencia de la diferencia de momento produce una reducción en la ganancia efectiva del amplificador paramétrico y por consecuencia del oscilador.

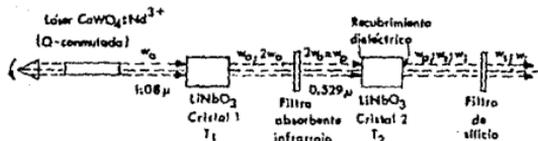


FIG. 8. OSCILADOR PARAMETRICO UTILIZADO POR BIOROMAINÉ Y MILLER.

ω_p , ω_s Y ω_i SON LAS FRECUENCIAS DE BOMBEO, DE SEÑAL E INTERMEDIA RESPECTIVAMENTE.

Hasta la fecha osciladores paramétricos han sido sintonizados a través del visible y el cercano infrarrojo en cristales KDP y ADP al ser bombeados por los segundos y cuartos armónicos de un láser Nd:YAG a 1.06 μm . En RDA y LiNbO₃ osciladores paramétricos han operado sobre el rango completo de longitudes de onda de 0.8 μm a 4.4 μm en el lejano infrarrojo. Oscilación paramétrica en LiIO₃ ha sido obtenida hasta 5.5 μm .

En el rango infrarrojo AgGeS₂ y CdSe han operado como osciladores paramétricos hasta 12 μm . Radiación sintonizable de 2.5 a 12.0 μm ha sido generada en AgGeS₂ y ZnGeP₂.

Existen diferentes configuraciones para los osciladores paramétricos ópticos. La primera distinción existe entre la operación cw y la pulsada. La operación pulsada ofrece mucha mayor ganancia; típicamente en este caso el bombeo es generado por fuentes láser de Q conmutada. Osciladores paramétricos también han operado dentro de la cavidad del láser de bombeo; pero la configuración externa es la más común. Como ya se mencionó, las dos configuraciones externas más importantes son la del oscilador doblemente resonante donde ambas ondas, señal e intermedia, resuenan entre los espejos de la cavidad, y el

oscilador uni-resonante en el cual sólo una onda esta resonando. Las aplicaciones de los osciladores paramétricos como fuentes continuas sintonizables ópticas han abarcado áreas tan importantes como: Espectroscopía infrarroja (Ref. 75 capítulo 5); percepción remota (Ref. 5); sistemas de comunicación y computación óptica.

Una discusión teórica de los osciladores paramétricos en la cual se tratan temas como; umbral; tiempo de subida; eficiencia en la conversión; sintonía, etc., es hecha por Byer, capítulo 3, Referencia Shen. En ella también se enlistan los osciladores paramétricos representativos, junto con sus principales características.

(Sección basada en Ref. 41 capítulo 2; Ref. 93 capítulo 22; Ref. 94 capítulo 17 y Ref. 96 capítulo 7).

2.4. Mezclado Raman coherente.

La dispersión Raman estimulada ha sido considerada también como una fuente potencial de nuevas frecuencias coherentes desde su descubrimiento accidental hecha por Woodbury y Hg. y su interpretación realizada por Eckhardt en 1962.

Con el desarrollo de láser sintonizables de alta potencia la dispersión Raman está siendo nuevamente considerada como un medio para extender el rango de sintonía de las fuentes sintonizables disponibles.

Hay tres métodos para generar radiación por el proceso Raman, ellos son: la dispersión Raman estimulada; el mezclado Raman de 4 frecuencias, el cual es un proceso paramétrico; y la dispersión Raman estimulada seguida por una interacción mezclante.

En el primero de ellos, una fuente sintonizable de alta potencia ω_p al hacerse incidir sobre una celda conteniendo un medio Raman y mezclarse con las vibraciones Raman coherentes inducidas ω_v , produce bandas laterales Raman de menor frecuencia $\omega_s = \omega_p - \omega_v$.

Como se vio en el capítulo anterior; la amplitud de la frecuencia Raman Stokes generado crece exponencialmente, gracias a la presencia de ω_p , con un factor de ganancia:

$$g = -k_{\Omega} \left\{ \epsilon_o' \epsilon_s \right\} \chi_{\text{RAMAN}}''(\omega_s) |A(\omega_p)|^2 \quad (5-23)$$

$$= -2 \frac{\omega_s}{c \epsilon_s} \chi_{\text{RAMAN}}'' I_p$$

Con I_p la intensidad pico de la onda de bombeo.

La ecuación (5-23) muestra que la ganancia Raman disminuye al decrecer ω_s . Por otro lado; la intensidad de bombeo también disminuye con ω_s , a una potencia pico constante; debido a la

dependencia de la frecuencia del área del rayo. Como consecuencia en la práctica la dispersión Raman estimulada es progresivamente más difícil de alcanzar cuando las frecuencias se alejan del visible al rango infrarrojo.

Para obtener ganancia Raman significativa es posible utilizar resonadores ópticos a la frecuencia ω_s . El umbral para oscilación Raman dentro de un resonador con reflectividad de los espejos R_1 y R_2 , y pérdida α (por absorción y difracción) es $1 = R_1 R_2 e^{2\alpha l - \alpha l}$. Debido a las grandes potencias requeridas para alcanzar ganancias considerables en la conversión Raman, las sustancias empleadas son normalmente gases o líquidos. Aun con ellas las potencias de bombeo están limitadas por la ruptura del material.

Utilizando este método en 1972 Schmidt y Appt reportaron la emisión Raman anti-Stokes sintonizables IR en H_2 , empleando como fuente de bombeo un láser colorante. En una extensión de este experimento, Frey y Pradere generaron radiación infrarroja sintonizable sobre el rango de 14,000 a 2,300 cm^{-1} bombeando H_2 y CH_4 con un sistema amplificador-láser colorante con bombeo láser de rubí. Potencias de salida de 20 a 60 MW entre 14,000 y 2,700 cm^{-1} , 5-20 MW entre 9,700 y 5,500 cm^{-1} se obtuvieron con anchura de línea de 0.07 cm^{-1} .

Para obtener eficiencias en la conversión relativamente altas de 10-20%, para el primer rayo Stokes Frey y Pradere usaron una segunda celda amplificadora Raman después de la primera. De esta manera la potencia de salida en kW de la primera celda Raman se amplificó a niveles de potencia pico de MW.

Otra forma alternativa de superar la baja ganancia Raman en gases moleculares es mediante la realización de la dispersión Raman cerca de la resonancia electrónica del sistema. La ventaja de mayores ganancias en dispersión Raman electrónica ocurre a expensas de una disminución en el rango de sintonía debido a la resonancia local.

Usando un láser colorante bombeado con un láser de nitrógeno Cotter et al fueron capaces de generar radiación Stokes sintonizable cerca de la resonancia de 2.7 μm en vapor de potasio con un rango de sintonía de aproximadamente 1000 cm^{-1} . Potencias de salida de hasta 1 kW se obtuvieron para potencias de entrada de 20-30 kW cerca de 0.404 μm con 0.2 cm^{-1} de anchura de línea. Este y otros experimentos mostraron la posibilidad de alcanzar eficiencias hasta del 40% mediante el aumento de la presión del gas y de la frecuencia del láser de bombeo.

Un método alternativo para generar radiación sintonizable mediante procesos Raman consiste en mezclar en la celda Raman las dos ondas resultantes ω_s y ω_p de la dispersión Raman con una tercera onda incidente sintonizable ω_l , generándose una onda de salida $\omega_o = \omega_s + \omega_l - \omega_p$. El medio Raman actúa de esta manera como un mezclador con una frecuencia de oscilación local $\omega_R = \omega_p - \omega_s$. Este

proceso de mezclado fue discutido primero por Shen, Bloembergen, Giordmaine y Kaiser quienes lo demostraron en calcita. Posteriormente Duardo et al realizaron experimentos en H_2 y CH_4 , describiendo la generación de nuevas frecuencias en términos del mezclado con oscilación Raman impulsada coherentemente.

Harris y Byer propusieron, por primera vez, utilizar el mezclado como una fuente de radiación sintonizable con buena eficiencia en la conversión debida al proceso de mezclado. Posteriormente Fleming demostró que bajo ciertas condiciones de excitación el acoplamiento de fase no es necesaria.

En una primera aproximación, el proceso de mezclado Raman coherente tiene una eficiencia en la conversión bajo acoplamiento de fase:

$$\frac{I_o}{I_i} = \left[\frac{\omega_o}{\omega_s} \right]^2 \frac{n_s n_p}{n_o n_i} \frac{I_s}{I_p}$$

La eficiencia no depende de la intensidad de la onda incidente sintonizable I_i , y es igual a la eficiencia en la conversión del campo de bombeo al campo Stokes multiplicada por una factor $(\omega_o/\omega_s)^2$. Esta es la misma eficiencia en la conversión para el mezclado en un cristal no lineal o eficiencia en la conversión para el mezclado.

Bajo condiciones óptimas el proceso de mezclado Raman coherente puede generar una señal de salida sintonizable correspondiente a un 40% de eficiencia fotónica, sin las limitaciones inherentes del mezclado en cristales no lineales como son: el acoplamiento de fase, el bajo umbral de daño y la dificultad en obtener cristales de adecuada dimensión y calidad (Ref. Shen capítulo 3 sección 3.4 páginas 109 y 117).

Respecto al mezclado Raman de 4 ondas, una descripción de este proceso puede encontrarse en el Shen capítulo 8.

2.5. Mediciones de frecuencia de radiación óptica.

Otra de las aplicaciones sobresalientes de los procesos no lineales es la medición de frecuencias de radiación óptica utilizando el mezclado de frecuencias.

Aunque la técnica de medición está aún en la etapa de desarrollo; su factibilidad ya ha sido demostrada experimentalmente. La primera prueba experimental de esta técnica fue presentada en 1979 por Kenneth M. Baird y colaboradores. Ellos midieron directamente la frecuencia visible de la línea verde de un láser de I_2 (512 THz). Una hazaña que ganó un reconocimiento no frecuentemente otorgado a un científico: La mención en el libro de Guinness de records por la frecuencia más alta medida.

Considerando que es posible medir oscilaciones electromagnéticas hasta aproximadamente 500 MHz directamente utilizando técnicas electrónicas, la medición de frecuencias

mayores requerirá el uso de la generación armónica y de técnicas heterodinantes, basadas en el siguiente principio:

Un instrumento que tiene respuesta no lineal convertirá una señal senoidal en una salida distorsionada, la cual contiene armónicos de la señal original. Tal instrumento también convertirá una mezcla de 2 señales senoidales con frecuencias ligeramente diferentes, en una salida que contiene una señal correspondiente a la diferencia de las frecuencias entre las dos señales originales. Claramente, si las dos señales, una de las cuales es cercanamente igual al armónico de la otra, se mezclan en el instrumento no lineal adecuado, la señal compuesta de salida contendrá una señal a la misma frecuencia que la diferencia entre una de las señales y el armónico de la otra. Al medir la frecuencia de la pulsación f_b , se obtendrá la frecuencia mayor f_2

en términos de la menor f_1 : $f_2 = Nf_1 + f_b$. Por lo tanto, es posible medir frecuencias muy altas, a condición de que la frecuencia de la pulsación sea lo suficientemente baja para ser medida y contada por circuitos electrónicos convenientes.

El único requisito técnico es que el instrumento no lineal usado para la generación y el mezclado tenga respuesta muy rápida.

Por supuesto es importante que las oscilaciones sean suficientemente coherentes (esto es, ellas deben de sufrir cambios de frecuencia de manera muy lenta) para permitir la observación de un número adecuado de oscilaciones y realizar con ellas una medida significativa. Cuando el método es aplicado apropiadamente se pueden medir el número de oscilaciones de la señal de mayor frecuencia, durante un número dado de periodos de la señal de menor frecuencia, sin perder una sola oscilación.

Alternativamente la señal de la pulsación puede usarse en un circuito retroalimentador para controlar una de las frecuencias, forzándola a mantener una relación dada con la otra señal, todo esto durante una fracción de un ciclo. Tales señales, se dice, están en fase cerrada.

Estas técnicas son bien conocidas en el rango de radiofrecuencias y microondas. Dos son los desarrollos que han permitido aplicar estas técnicas para medir frecuencias en la región óptica del espectro. La primera fue la invención del láser, el cual además de cumplir con el requisito de coherencia proporcionó un patrón de referencia muy preciso, gracias al avance de la espectroscopia libre de efectos Doppler y a los métodos de estabilización de frecuencia. La segunda fue el desarrollo apropiado de instrumentos no lineales de alta velocidad.

Los más importantes instrumentos no lineales son: el diodo metal-óxido-metal de punto de contacto y los cristales ópticos no lineales.

El diodo puede mezclar y generar señales sumas y diferencia desde dc hasta aproximadamente 200 THz (a una longitud de onda de $1.5 \mu\text{m}$). Al enfocar radiación infrarroja sobre el diodo se genera una corriente en el circuito a la frecuencia de pulsación deseada.

Los cristales no lineales son útiles en el rango de 30 THz ($10 \mu\text{m}$) hasta frecuencias de radiación en el visible y el ultravioleta. Luz monocromática viajando a través de tales cristales generan, como sabemos, ondas acompañantes de mayor

frecuencia. Estos cristales pueden usarse para la generación armónica y el mezclado de señal de la misma manera que otros instrumentos no lineales, pero debido a que ellos no producen una señal eléctrica útil es necesario acopiarlos con detectores apropiados.

Existen limitaciones importantes en el uso de cristales: Primero, rango limitado de utilidad. Segundo, ellos tienen coeficientes no lineales extremadamente pequeños, así, que para obtener salidas útiles, las señales generadas en una longitud de camino considerable deben sumarse coherentemente satisfaciendo el acoplamiento de fase ($\Delta k=0$). Este último requisito puede cumplirse utilizando cristales birrefringentes, al sintonizar la birrefringencia por temperatura o ángulo de propagación.

Aunque estos desarrollos han hecho posible las comparaciones directas de las frecuencias ópticas con las frecuencias de microondas, actualmente hacer tales comparaciones está lejos de ser una tarea simple; quedan muchos problemas por resolver para alcanzar la meta prometida de mediciones muy precisas de frecuencias ópticas con respecto a patrones de microondas. No obstante con la precisión y el rango alcanzados en los métodos de conteo de frecuencias ópticas se ha obtenido un resultado importante; a saber, la modificación fundamental de la definición de metro. Anteriormente el metro era definido en términos de la longitud de onda de una línea espectral del Kriptón, hoy se define como la distancia que la luz viaja en un tiempo dado ($1/299,792,458$ seg.). Esta definición del metro producirá nuevos patrones de tiempo y de frecuencia.

Con el perfeccionamiento de las técnicas de medición se espera mejorar el conocimiento de la velocidad de la luz además de que al estar las técnicas utilizadas en estrecha relación con las de espectroscopia de alta resolución, las medidas de frecuencia también afectarán nuestro conocimiento acerca de otras constantes físicas importantes, tal como la de Rayleigh (Refs. 9 y 52).

3. Estudio de materiales.

El estudio de materiales ópticos no lineales se realiza a través de diferentes formas de espectroscopia no lineal basadas en las características de intensidad, coherencia, direccionalidad y monocromaticidad de la luz láser. Utilizando estas formas de espectroscopia es posible identificar y entender propiedades de los materiales, tales como:

modos vibracionales o rotacionales, tiempos de decaimiento y de defasaje de fonones y de vibraciones moleculares, medición de susceptibilidades no lineales, medición de concentraciones locales del material (en flamas, aerosoles y con posibilidad de realizarse en células vivas), medición de temperatura, etc.

3.1. Espectroscopia no lineal.

La espectroscopia no lineal utiliza la resonancia multifotónica que ocurre en la susceptibilidad no lineal de una manera análoga a la resonancia de un solo fotón utilizada en espectroscopia lineal.

La información espectroscópica no lineal deseada se proporciona por la variación de una cantidad resultante de la interacción no lineal (la potencia generada en un proceso de mezclado de 4 fotones, la población de estados excitados en una medida de absorción multifotónica, el cambio de polarización en una medida que involucre un efecto óptico Kerr, o la ganancia o pérdida inducida en un proceso de saturación en la absorción) cuando los armónicos o la combinación de frecuencia suma o diferencia de las ondas incidentes se sintoniza en una resonancia apropiada. La espectroscopia no lineal puede, por lo tanto, diferenciarse de las aplicaciones del mezclado de frecuencia usado en espectroscopia lineal, en el cual un campo de radiación se crea a través de una interacción no lineal en un medio y es subsiguientemente usado como una fuente de iluminación para otro material.

Los estudios de espectroscopia no lineal pueden proporcionar información acerca de los niveles o estados de energía del medio que no son usualmente accesibles a través de espectroscopia lineal, ya sea porque ellos caen en una región absorbente del espectro o por restricciones de paridad. Diferentes formas de espectroscopia pueden también proporcionar incrementos en los niveles de señal, en las razones de señal-ruido, o en la resolución espectral sobre las técnicas de espectroscopia lineal, esto bajo ciertas condiciones.

Dependiendo del método aplicado y de la información obtenida es posible dividir las técnicas espectroscópicas no lineales en 3 grupos:

- 1) Espectroscopia libre de efectos Doppler (Refs. 32, 53, 40, 54, y 61).
- 2) Espectroscopia Raman coherente (Refs. 52, 55, 61, 68 capítulo 8, 87).
- 3) Espectroscopia de pico y subpicosegundo (Refs. 3, 4, 47, 60, 74).

En este trabajo nos restringiremos a discutir sólo la espectroscopia Raman coherente; no obstante, se citan las referencias donde pueden consultarse las otras técnicas de espectroscopia no lineal.

3.1.1. Espectroscopia Raman Coherente.

A partir de su descubrimiento en 1928 la dispersión Raman proporcionó una herramienta para la investigación de los niveles de energía que no son usualmente accesibles por las técnicas de absorción y de emisión.

Aunque considerada en principio como una técnica exótica y laboriosa, importante más por su utilidad para demostrar los principios de la mecánica cuántica que por su uso práctico. Es en la actualidad, gracias al láser, un procedimiento analítico rutinario, que permite estudiar las excitaciones vibracionales y rotacionales de las moléculas de los materiales.

Dentro de la espectroscopia Raman sobresalen las técnicas coherentes, en las cuales los modos Raman de un medio se estudian a partir de la emisión, por parte del medio, de un rayo coherente que contiene los detalles del espectro. Muestras en las cuales la dispersión Raman espontánea es intrínsecamente débil, y enmascarada por la fluorescencia y la radiación de cuerpo negro, pueden ser ahora analizadas.

La ventaja de las técnicas Raman coherentes resulta del hecho de que los campos láser a dos frecuencias diferentes ω_1 y ω_2 pueden forzar un modo Raman particular $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ de un medio para producir una constante dieléctrica oscilante, la cual entonces interactúa con un campo ω_4 produciendo un rayo de salida coherente $\omega_5 = \omega_3 + \omega_4$.

La espectroscopia Raman coherente es por lo tanto una espectroscopia mediante de 4 fotones.

La potencia en el rayo de salida ω_5 puede ser muchos órdenes de magnitud mayor que la potencia de la radiación dispersada espontáneamente, lo que permitirá utilizar un filtrado espacial para separar el rayo de salida ω_5 de la radiación no deseada.

La polarización fuente del campo generado ω_5 es:

$$P_i(\omega_5) \propto \sum_k \left\{ \frac{(N_1 - N_2) \alpha'_{ij} \alpha'_{kl}}{\omega_3^2 - (\omega_1 - \omega_2)^2 + 2i\Gamma(\omega_1 - \omega_2)} \right\} \\ \times E_i(\omega_3) E_k(\omega_1) E_l^*(\omega_2) \quad (14)$$

Donde $(N_1 - N_2)$ es la diferencia en la población de los 2 niveles separados por las frecuencias circular Raman y α'_{ij} $\left[\frac{\partial \alpha}{\partial x} \right]_{ij}$ es la polarizabilidad diferencial del medio (ver ecuación 5-13).

Esta polarización, la cual es cúbica en las amplitudes de los campos eléctricos incidentes, actúa como un término fuente en las ecuaciones de Maxwell para producir el rayo de salida ω_4 . Como sabemos; la cantidad entre paréntesis es la contribución Raman a la susceptibilidad no lineal de tercer orden $\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_4, \omega_1, \omega_2, -\omega_3)$. Si $N_2 \neq 0$, el proceso paramétrico de mezclado de 4 fotones puede describirse por un diagrama de niveles como el de la figura (9).

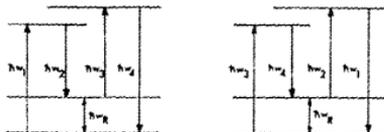


FIG. 9. DIAGRAMA DE NIVELES PARA UN PROCESO RAMAN COHERENTE. LOS CAMPOS OPTICOS DEBEN TENER AMBAS COMPONENTES DE FRECUENCIA POSITIVA Y NEGATIVA; PERO LA FRECUENCIA DETECTADA DEBE CORRESPONDER A ALGUNA SUMA DE LAS ENTRADAS.

EL DIAGRAMA DE LA IZQUIERDA MUESTRA UN PROCESO DE MEZCLADO PARAMETRICO DE 4 FOTONES DEL TIPO CARS Y EL DE LA DERECHA UN PROCESO TIPO RIKES.

Como mencionamos en el capítulo anterior, existen otros procesos que involucran reorientación molecular y transiciones electrónicas reales o virtuales que también contribuyen a la señal radiada. Estas señales de fondo no resonantes son muy independientes de $\omega_4 - \omega_2$ y están consideradas en el término independiente χ_{ijkl}^{nr} de $\chi^{(3)}$. En algunos experimentos el nivel de fondo es interesante, en otros sólo despreciables. El término Raman resonante interfiere constructivamente y destructivamente con el fondo, produciendo una función forma de línea con máximos y mínimos.

Todos los procesos que conducen una salida a ω_4 pueden describirse por una susceptibilidad tensorial no lineal $\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3)$. En el argumento de este tensor de cuarto rango, sólo tres frecuencias son independientes ya que

$\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \omega_4 = 0$. Por convención las frecuencias argumento y los subíndices de polarización están apareados y pueden permutarse mientras su apareamiento sea respetado. Las consideraciones de simetría afortunadamente reducen el número de elementos no nulos independientes y permite la clasificación de las simetrías de los modos observados por técnicas Raman coherentes en diferentes condiciones de polarización. A diferencia de la susceptibilidad no lineal de segundo orden responsable de la generación óptica de segundos armónicos, $\chi^{(2)}$ no se anula para ningún grupo-simétrico. Por lo tanto, las técnicas de espectroscopia Raman coherente son generalmente aplicables a cualquier sustancia.

Una mayor ventaja de estas técnicas es la gran señal producida a ω_4 . El formalismo de la óptica no lineal puede utilizarse para estimar la potencia radiada (en watts) a esta frecuencia como:

$$W_4(\omega_4) = 2 \times 10^{-20} \frac{\omega_4}{n^4} \frac{l_{\text{eff}}}{A^2} \left| \sum_{j,k,l} \chi_{ijkl}^{(2)} \right|^2$$

$$W_j(\omega_j) W_k(\omega_k) W_l(\omega_l) W_4(\omega_4) \quad (15)$$

Los factores de 4o. orden correspondientes a la degeneración de frecuencia han sido suprimidas en la ecuación (15), y $W_j(\omega_j)$, $W_k(\omega_k)$, $W_l(\omega_l)$ son las potencias de los láseres incidentes en watts a las frecuencias circulares ω_1 , ω_2 y ω_3 polarizados en las direcciones j , k y l ; A es el área donde los rayos interactúan (en cm^2); n es el índice de refracción lineal del medio. La susceptibilidad no lineal $\chi^{(2)}$ utilizada en la ecuación (15) está expresada en unidades electrostáticas. La longitud de interacción efectiva (l_{eff} en la ecuación) es siempre menor que las distancia sobre la cual los rayos coinciden.

La potencia depende de de una manera más compleja de la diferencia de los vectores de onda de los rayos interactuantes $\Delta k = |k_1 - k_2 + k_3 - k_4|$ y de los detalles de la geometría de interacción. Generalmente la mejor realización se obtiene cuando Δk es tan pequeño como sea posible; si es grande, la longitud de interacción influye en la potencia reduciéndola como $1/\Delta k$. Valores despreciable de Δk ocurren automáticamente en varias técnicas de espectroscopia Raman coherente. En otras la dirección de propagación de los rayos incidentes debe ajustarse para alcanzar el acoplamiento de los vectores de onda.

La potencia radiada depende del cuadrado del valor absoluto de la susceptibilidad Raman y del cuadrado de la longitud de interacción. Para líquidos y sólidos típicos, estos parámetros tienen valores aproximados del orden de 10^{-19} ues y 0.1 cm; mientras que a presión y temperatura estandar; gases típicos tienen susceptibilidad no lineal 100 veces más pequeña; aunque permiten longitudes de interacción 10 veces mayores.

En un experimento Raman coherente en el cual láseres de 10 kW son enfocados en un área de 10^{-3} cm², la ecuación (15) da una salida de 0.055 W para $\chi^{(3)} = 10^{-13}$ ues y $l_{\text{eff}} = 0.1$ cm, y 0.002 W para $\chi^{(3)} = 10^{-15}$ ues y $l_{\text{eff}} = 2$ cm; para una salida a 5000 Å. La razón de la colección de datos, de cualquier manera, es proporcional a la potencia de salida rms.

Para pulsos láser de 8 nanosegundos de longitud y una razón de repetición de 15 pulsos por segundo, la salida rms es 16.5 microwatts para un sólido "típico", y de 0.6 μwatts para un gas "típico". En un experimento de dispersión espontánea en el cual 10^7 fotones a 5000 Å son recolectados por segundo, la potencia de señal rms es 4×10^{-12} W.

De acuerdo a la ecuación (15), la potencia de salida rms es proporcional al promedio temporal de un producto cubico de potencias láser. Tomando literalmente, esto implica que láseres con mayor pulsado producirán un mejor resultado. En la práctica láseres de pulsado modesto con baja razón de repetición son más convenientes. Excelentes resultados han sido obtenidos con láseres cw., especialmente cuando la muestra puede insertarse dentro de la cavidad láser.

Las diferentes ventajas de observar el espectro Raman por medio de mezclado óptico no lineal ha resultado en una variedad de técnicas de espectroscopia Raman coherente: Acrónimos y neologismos tales como CAPS (Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy), RIKES (Raman Induced Kerr Effect Spectroscopy), HORSES (High Order Raman Spectral Excitation Spectroscopy), CSRS (Coherent Stokes Raman Spectroscopy), "Submarino", "helicoptero", "Asterisco", etc., han sido inventados para nombrar cada variación del proceso paramétrico básico de mezclado de 4 fotones. Como una herramienta espectroscópica. Cada técnica tiene su propio conjunto de ventajas y desventajas, y es importante conocerlas para su aplicación apropiada en investigación.

Como un ejemplo, a continuación discutimos una de estas técnicas de espectroscopia Raman coherente, la llamada espectroscopia Raman anti-Stokes coherentes o CARS por sus siglas en inglés (Ref. 55).

3.1.1.a. Espectroscopia Raman anti-Stokes coherente (CARS).

En la técnica más ampliamente utilizada de espectroscopia Raman coherente, dos frecuencias láser incidentes son empleadas, y $\omega_1 = \omega_2$ en el diagrama de niveles mostrado en la figura (10.a). La frecuencia de salida es entonces $\omega_4 = 2\omega_1 - \omega_2$. Si ω_1 corresponde a la frecuencia láser en un experimento de dispersión espontánea y ω_2 a un fotón dispersado-Stokes, la salida ocurre a la correspondiente frecuencia anti-Stokes (si ω_1 es menor que ω_2 , la

técnica análoga es llamada espectroscopia Raman Stokes coherente o CSRS por sus siglas en inglés). Paul Maker y Robert Terhune, usando frecuencias discretas, inicialmente demostraron esta técnica en 1966. Llegando a ser un herramienta práctica hasta 1972, cuando varios grupos comenzaron a emplear repetitivamente láseres colorantes pulsados para examinar continuamente el espectro Raman.

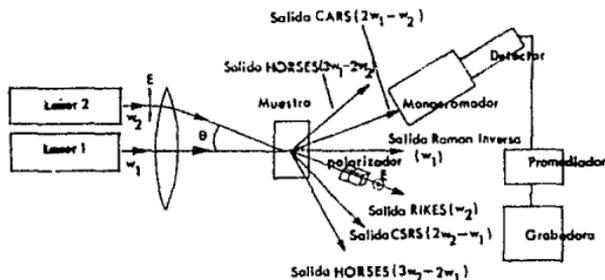


FIG. 10. ARREGLO TÍPICO DE UN EXPERIMENTO CARS. TAMBIEN SE MUESTRAN LAS DIRECCIONES DE LOS RAYOS DE SALIDA PARA OTRAS TÉCNICAS RAMAN COHERENTES RIKES, CSRS, HORSES Y EFECTO RAMAN INVERSO. EN EL MEZCLADO DE 4 ONDAS, UN RAYO ADICIONAL SERA AÑADIDO, COLINEAL CON EL RAYO LASER 1. LA SALIDA RIKES TIENE SU VECTOR ELECTRICO POLARIZADO NORMAL AL RAYO.

La figura (10) describe un arreglo típico CARS, junto con la salida usada en otras técnicas Raman. Dos láseres son enfocados en una muestra con un ángulo entre los rayos que satisfacen la condición de acoplamiento del vector de onda $\Delta k = 0$ para un proceso total de mezclado de 3 ondas. En gases este ángulo es esencialmente cero; pero en fase condensada depende de $\omega_1 - \omega_2$ y de la dispersión del índice de refracción.

El rayo que emerge de la muestra a ω_1 se selecciona por medio de filtros o de un monocromador simple, siendo su intensidad detectada fotoeléctricamente. Para el estudio, la fracción diferencia $\omega_1 - \omega_2$ se varía sintonizando uno o ambos láseres. Graficada como una función de $\omega_1 - \omega_2$, la salida refleja el espectro Raman de la muestra.

La tremenda potencia de esta técnica para tomar espectros

Raman de gases puede ilustrarse mediante algunos ejemplos.

Con potencias láser de 2 MW a ω_1 y 0.2 MW a ω_2 , y $\omega_1 - \omega_2$ en la rama Q de la transición modal vibrante ($\nu_1 = 0 + 1$) en metano; A. Harrvey y J. Nibler encontraron que el rayo de salida CARS de una muestra a 0.1 Torr era lo suficientemente fuerte para observarse con los ojos. Láseres similares 1000 veces más intensos están siendo utilizados en estudios relacionados con separación de isótopos. Consecuentemente, una mejora en la sensibilidad de 3 ordenes de magnitud puede esperarse cuando estos láseres más potentes se usen en CARS.

En un ingenioso experimento con láseres cw., A. Hirth y K. Vollroth obtuvieron el espectro de la rama Q de nitrógeno a presión atmosférica en 10 milisegundos. Las técnicas de dispersión convencionales hubieran tomado cerca de una hora en dar una resolución y una relación lineal señal-ruido comparables. Wolfgang Kaiser y A. Laubereau ha usado láseres sincronizados de picosegundos en CARS para medir los tiempos de decaimiento y de defasaje de vibraciones moleculares.

La técnica CARS también está siendo utilizada, en el estudio de flamas; productos de la combustión y aerosoles. A partir de ella ha sido posible medir temperatura y concentración de especies en flamas y aerosoles. Resultados que están siendo aprovechados por la industria automotriz y en el monitoreo de contaminación atmosférica (Refs. 13, 28, 46 y 48).

Capítulo 7. Conclusión.

En esta tesis hemos presentado una monografía acerca de la óptica no lineal. A partir de ella nos hemos dado cuenta de como la óptica no lineal junto con el desarrollo de nuevos láseres, de nuevos métodos de espectroscopia y del continuo descubrimiento de aplicaciones científicas y prácticas de estas tecnologías, han colocado a la óptica al frente de la física contemporánea. En la continua productividad y crecimiento de esta parte de la física, hemos visto como la óptica no lineal ha contribuido con nuevos avances en espectroscopia y en óptica cuántica, así como con el desarrollo de nuevas fuentes de luz. Es de esperarse que en los años por venir la investigación en óptica no lineal se intensifique, con el fin de alcanzar varios objetivos, entre los cuales se encuentran: El desarrollo de nuevos materiales altamente no lineales (materiales orgánicos, líquidos y gases); el estudio de fenómenos no lineales producidos por χ^2 y χ^3 en guías de onda (fenómenos tales como bistabilidad óptica, conjugación de fase, acoplamiento coherente no lineal y acoplamiento dependiente de la potencia, compresión de pulsos, etc.), para su aplicación en comunicación; la explotación de nuevas técnicas, tales como la generación armónica y la excitación multifotónica, para producir luz láser de longitudes de onda corta (comprendida entre el lejano ultravioleta y la región de rayos X); y la generación de pulsos ópticos con una duración de femtosegundos o menor. El alcanzar estos objetivos hará realidad muchas metas propuestas por los investigadores, tales como: La computación óptica, la sustitución de electrones por fotones en comunicación, y la holografía de rayos X. Es por lo tanto vital desarrollar la óptica no lineal en nuestro país, para aprovechar los beneficios que acarreará su conocimiento.

1. Introducción a tensores.

Una propiedad física puede expresarse como una relación entre dos cantidades físicamente medibles. Por ejemplo, si un campo eléctrico E se aplica a un cristal, producirá una polarización P . E y P se relacionan por la propiedad física conocida como susceptibilidad dieléctrica χ . En un medio isotrópico, el campo eléctrico y la polarización son proporcionales y χ se caracteriza por un número que es igual a la razón de las amplitudes de P y E . Este no es el caso, de cualquier manera, cuando el material es anisotrópico. E y P no son ya paralelos, cada componente de una de las cantidades físicas es una función de todas las componentes de la otra. La susceptibilidad dieléctrica, al igual que todas las propiedades físicas asociadas con un cristal anisotrópico, pueden ser representadas por un tensor, el cual muestra claramente las variaciones de esta propiedad como una función de la dirección de observación.

Esta fuera de la visión de esta monografía definir rigurosamente y con toda generalidad la entidad matemática conocida como tensor. Bastará, por lo tanto, con introducir la idea de un tensor en el espacio \mathbb{R}^3 referido a los ejes ortogonales de referencia. Partiendo, para esto, del principio de Newman.

El principio de Neuman afirma que una propiedad física debe poseer la simetría grupo-punto cristalográfica. Estas simetrías tendrán naturalmente un efecto sobre las formas en que las propiedades físicas se representan, anulándose ciertas componentes del tensor asociado y conduciendo a relaciones entre las componentes no nulas.

Además de las simetrías cristalinas las propiedades físicas poseen sus propias simetrías, conocidas como simetrías intrínsecas.

1.1. Definición de un tensor.

Una propiedad física puede caracterizarse en un punto de un sistema por un grupo de números asociados con ella, formando una representación matemática. Por ejemplo, un campo eléctrico es un vector definido en un sistema de referencia dado por 3 números que son las componentes del vector. Un número simple (escalar) es suficiente para describir temperatura, voltaje eléctrico, o densidad. La tensión, deformación, conductividad y susceptibilidad eléctrica se caracterizan en un punto por 9 números (en un hecho real, las consideraciones físicas reducen este número a 6). Algunas propiedades físicas necesitan todavía más números (27, 81, etc.) para estar completamente caracterizadas.

Cada representación se relaciona con el sistema espacial de referencia, el cual debe consecuentemente ser especificado.

Cambiando el sistema de referencia se modificará la representación matemática. La propiedad o cantidad física representada ciertamente no depende del sistema de referencia (La elección de los sistemas de referencia es arbitraria y frecuentemente éstos son escogidos por conveniencia). Cuando se cambia el sistema de referencia, la modificación resultante de la representación debe expresar esta independencia de las cantidades representadas.

Considérese, por ejemplo, un sistema de referencia ortonormal, sean \hat{e}_1, \hat{e}_2 y \hat{e}_3 los vectores unitarios a lo largo de los ejes del sistema. Después de cualquier rotación del sistema respecto al origen, los vectores base se convierten en \hat{e}'_1, \hat{e}'_2 y \hat{e}'_3 . Los dos conjuntos \hat{e}'_j y \hat{e}_j ($j=1,2,3$; $j=1,2,3$) están unidos por la relación:

$$\hat{e}'_i = a_{ij} \hat{e}_j \quad (1)$$

o la inversa

$$\hat{e}_j = a_{ji} \hat{e}'_i \quad (1')$$

a_{ij} es el coseno de los ángulos formados entre \hat{e}'_i y \hat{e}_j , satisfaciendo, por lo tanto:

$$a_{ik} a_{jk} = \delta_{ij} \quad (2)$$

Las relaciones (1) (1') y (2) se escriben de acuerdo con la convención de Einstein para suma sobre índices mudos (ver lista de símbolos p.10).

Si las componentes de un vector son designadas por x_j en el sistema de referencia \hat{e}_1, \hat{e}_2 y \hat{e}_3 , y las componentes del mismo vector en la base \hat{e}'_1, \hat{e}'_2 y \hat{e}'_3 son x'_i , entonces se encuentra:

$$x'_i = a_{ij} x_j \quad (3)$$

$$x_j = a_{ji} x'_i \quad (3')$$

Con base en lo anterior, es posible definir los tensores de orden (o rango) uno y dos:

Un tensor de orden uno es un conjunto de tres números x_1, x_2 y x_3 , el cual se transforma bajo un cambio de coordenadas definido por las componentes vectoriales a_{ij} , esto es, siguiendo las fórmulas (3) y (3'). Similarmente un tensor de rango 2 es una entidad matemática que, en relación a un sistema coordinado,

¹ Si las coordenadas de un punto se designan por x_i (2) y (3') son también válidas para la transformación $x_i \rightarrow x'_i$ de las coordenadas de un punto después de un cambio de ejes de referencia.

posee $3^2=9$ componentes τ_{kl} , las cuales bajo un cambio de ejes definidos por las a_{ij} , se transforman en 9 nuevas componentes τ'_{ij} , siguiendo la relación:

$$\tau'_{ij} = a_{ik} a_{jl} \tau_{kl} \quad (4)$$

Un escalar caracterizado por un solo número, invariante bajo cualquier cambio de los ejes de referencia, se considera como un tensor de rango cero.

Considérese una propiedad física tal como la conductividad eléctrica σ , la cual enlaza dos cantidades medibles, campo eléctrico \vec{E} y la densidad de corriente \vec{J} :

$$\vec{J} = \sigma \vec{E} \quad (5)$$

En un medio anisotrópico la relación (5) se escribe:

$$J_i = \sigma_{ij} E_j \quad (5')$$

(5') hace posible una interpretación simple de los coeficientes σ_{ij} . El término σ_{ij} es la componente a lo largo del eje i de la densidad de corriente inducida por un campo eléctrico unitario paralelo al eje j .

Veamos como los 9 coeficientes σ_{ij} se transforman bajo un cambio de ejes tal como los definidos anteriormente. Conociendo la forma en que las componentes J_k y E_j se transforman bajo un cambio de ejes como expresiones en términos de J'_i y E'_i , es posible expresar:

$$J'_i = a_{ik} J_k = a_{ik} \sigma_{kl} E_l = a_{ik} a_{jl} \sigma_{kl} E'_j \quad (6)$$

Una comparación de (6) y (5') establece que, bajo un cambio de ejes, σ'_{ij} da σ_{ij} , escribiéndose su relación:

$$\sigma'_{ij} = a_{ik} a_{jl} \sigma_{kl} \quad (4'')$$

Las σ_{ij} son, de acuerdo a la definición dada anteriormente, las componentes de un tensor de 2o. rango. Las σ_{ij} son expresiones de la conductividad en la referencia de la base e_i .

La demostración anterior es general. Todas las propiedades físicas que conectan dos cantidades vectoriales por una relación del tipo (5) se describen por un tensor de segundo rango. La definición de un tensor de rango n es una generalización natural proveniente de los conceptos de tensores de rango 0, 1 y 2.

Definición:

Un tensor de rango n es una entidad matemática que, con referencia a un sistema coordenado cartesiano, posee 3^n

componentes $\tau_{klm\dots s}$, las cuales bajo un cambio de ejes de referencia caracterizado por a_{ij} , se transforman en 3^n componentes $\tau'_{ijp\dots t}$, obedeciendo las relaciones:

$$\tau'_{ijp\dots t} = a_{ik} a_{jl} a_{pm} \dots a_{ts} \tau_{klm\dots s} \quad (7)$$

Cada uno de los subíndices de las componentes $\tau'_{ijp\dots t}$ y $\tau_{klm\dots s}$ puede tomar los valores 1, 2 y 3. Algunas de estas componentes pueden anularse o ser iguales; lo que reduce su número. Es esencial que todas las relaciones (7) sean obedecidas. En la práctica hay pocas propiedades físicas conocidas representadas por un tensor cuyo rango exceda a 4.

Apéndice 2.

Tensores de las susceptibilidades de segundo orden.

A continuación se presentan las formas contraídas de los tensores de generación de segundos armónicos (GSA), para las 21 clases de cristales que carecen de centro de simetría. Los ejes del cristal no lineal se escogen de acuerdo con la convención IRE. (Ref. 41, p. 55, tabla I).

SISTEMA TRICLINICO

Clase 1 - C_1

$$\begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \quad (18) \rightarrow \text{NUMERO DE ELEMENTOS DIFERENTES NO NULOS.}$$

SISTEMA MONOCLINICO

Clase m - C_{2h}

$$\begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & 0 & 0 & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & 0 & 0 & d_{26} \\ 0 & 0 & 0 & d_{34} & d_{35} & 0 \end{bmatrix} \quad m \perp Z \quad (10)$$

Clase m - C_{2h}

$$\begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & d_{35} & 0 \end{bmatrix} \quad m \perp Y \quad (10)$$

Clase 2 - C₂

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & d_{25} & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & d_{36} \end{bmatrix} \quad \begin{matrix} 2 \parallel Z \\ \\ \end{matrix} \quad (8)$$

Clase 2 - C₂

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{34} & 0 & d_{36} \end{bmatrix} \quad \begin{matrix} 2 \parallel Y \\ \\ \end{matrix} \quad (9)$$

SISTEMA ORTORROMBICO

Clase mm2 - C_{2v}

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{24} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (5)$$

Clase 222 - D₂

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{25} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{bmatrix} \quad (3)$$

SISTEMA TETRAGONAL

Clase 4 - C₄

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{14} & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (4)$$

Clase $\bar{4}$ - S_4

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -d_{15} & d_{14} & 0 \\ d_{31} & -d_{31} & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{bmatrix} \quad (4)$$

Clase $4mm$ - C_{4v}

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{bmatrix} \quad \begin{array}{l} \text{Ejemplo:} \\ \text{(BaTiO}_3\text{)} \end{array} \quad (6)$$

Clase $\bar{4}2m$ - D_{2d}

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{bmatrix} \quad \begin{array}{l} \text{Ejemplo:} \\ \text{KH}_2\text{PO}_4 \text{ (KDP)} \\ \text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4 \text{ (ADP)} \end{array} \quad (2)$$

Clase 422 - C_2

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (1)$$

SISTEMA TRIGONAL

Clase 3 - C_3

$$\begin{bmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & -d_{14} & -d_{11} \\ d_{31} & d_{31} & d_{32} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (6)$$

Clase 3m - C_{3v}

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{32} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{array}{l} \text{Ejemplo:} \\ \text{(LiNbO}_3 \text{ y LiTaO}_3) \\ m \perp X \\ (4) \end{array}$$

Clase 3m - C_{3v}

$$\begin{bmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & -d_{11} \\ d_{31} & d_{31} & d_{32} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{array}{l} m \perp Y \\ (4) \end{array}$$

Clase 32 - D_3

$$\begin{bmatrix} d_{15} & -d_{11} & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & -d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{array}{l} \text{Ejemplo:} \\ \text{(Te y cuarzo)} \\ (2) \end{array}$$

SISTEMA HEXAGONAL

Clase $\bar{6}$ - C_{3h}

$$\begin{bmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & 0 & 0 & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & 0 & 0 & -d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} (2)$$

Clase 6 - C_6

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{14} & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{32} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} (4)$$

La misma que la clase 4 - C_4

Clase $\bar{6}m2 - D_{3h}$

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad m \perp X \quad (1)$$

Clase $\bar{6}m2 - D_{3h}$

$$\begin{bmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad m \perp Y \quad (1)$$

Clase $6mm - O_h$

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad \begin{array}{l} \text{Ejemplos:} \\ \text{SiSiSi} \\ \text{SiSi} \end{array} \quad (1)$$

La misma que la de la Clase $4mm - C_{4v}$

Clase $622 - D_{6h}$

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (1)$$

La misma que la de la Clase $422 - D_4$

SISTEMA CUBICO

Clase $23 - T$

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{bmatrix} \quad \begin{array}{l} \text{Ejemplos:} \\ \text{Crystales de la} \\ \text{clase zincblenda:} \\ \text{GaAs, InAs, CdTe} \end{array} \quad (1)$$

Clase 43m - T₄

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{bmatrix} (1)$$

Clase 432 - 0

Todos los elementos se anulan

Apéndice 3.

Tabla 1.

Elementos del tensor de susceptibilidad no lineal para varios materiales orgánicos e inorgánicos (Ref. 93, tabla 21.1, p.345; Ref. 41, tabla V, pp.148-149 y Ref. 24).

Material	d_{ijk} en unidades 3×10^{-9}	n_o	θ	Umbral de daño óptico (MW/cm ²)
NH ₄ H ₂ PO ₄	$d_{312} = 0.45$	1.53	90°	>1000
(ADP)	$d_{123} = 0.45 \pm 0.02$	1.49		
KH ₂ PO ₄	$d_{312} = 0.45 \pm 0.03$	1.52	90°	>1000
(ADP)	$d_{123} = 0.45 \pm 0.03$	1.47		
CaF ₂	$d_{111} = 0.37 \pm 0.02$			
AlPO ₄	$d_{111} = 0.38 \pm 0.03$			
ZnO	$d_{333} = 6.5 \pm 0.2$ $d_{311} = 1.95 \pm 0.2$ $d_{113} = 2.1 \pm 0.2$			
CIS	$d_{333} = 28.6 \pm 2$ $d_{311} = 14.6 \pm 1$ $d_{113} = 16 \pm 3$			
GeP	$d_{122} = 80 \pm 14$			
GeAs	$d_{123} = 200 \pm 60$	3.30	-	60
LiNbO ₃	$d_{311} = 4.76 \pm 0.5$ $d_{222} = 2.8 \pm 1.0$	2.24	90°	50-140
Te	$d_{111} = 4200$	6.25	14°	40-60
Se	$d_{111} = 68$	4.80		
Urea	* $d_{36} = 3.77$	1.477 1.586		1.7×10^4 (a $\lambda = 0.582 \mu\text{m}$)
2-Metil-4 nitroanilina (MNA)	* $d_{11} = 83.3$ $d_{12} = 12.7$	# $n_x = 1.8$ $n_y = 2.0$ $n_z = 1.6$ $n_x^y = 1.489$		2×10^2 (a $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$)

* Notación de Voigt. # medidos a $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$

Tabla 2.

Comparación entre valores teóricos y experimentales de la susceptibilidad $4\chi_{\text{III}}^{\text{NL}}(-2\omega_1, \omega_1, \omega_2, -\omega_2)$ en unidades de 10^{-10} ues. El mezclado es debido los electrones de la banda de valencia, ω_1 y ω_2 corresponden a las líneas de un láser CO_2 10.6 μm y 9.6 μm respectivamente (Ref. 18, tabla II, p. 369).

Cristal	Ge	Si	GaAs
Experimento	+ 1.5	0.08	+ 0.10
Teoría ₁	- 0.88	- 0.063	- 0.13
Teoría ₂	- 1.5	- 0.53	---

Tabla 3.

Algunos materiales gaseosos que han sido usados para la conversión a terceros armónicos de la radiación de láseres de rubí se enlistan en la siguiente tabla, junto con las magnitudes de las susceptibilidades no lineales, el signo de dispersión y la resonancia involucrada (Ref. 66, p. 89, tabla 1).

MATERIAL	$\chi^{(3)}(-\omega_3)$	DISPERSION	RESONANCIA
HELIO	4×10^{-30}	POSITIVA	NINGUNA
NEON	7.6×10^{-29}	POSITIVA	NINGUNA
ARGON	124×10^{-30}	POSITIVA	NINGUNA
KRIPTON	316×10^{-30}	POSITIVA	NINGUNA
XENON	987×10^{-30}	POSITIVA	NINGUNA
H_2	80×10^{-30}	POSITIVA	NINGUNA
CO_2	156×10^{-30}	POSITIVA	NINGUNA
N_2	10^{-30}	POSITIVA	DE 2 FOTONES $\omega_2 - \omega_2 = 2\omega_2$

Bibliografia

- 1) Abu-Mustafa Y. S. and Psaltis D., "Optical Computers", Scientific American, Vol. 258, No. 3, p.88 (March 1987).
- 2) Adhav R. S. and Adhav S. R., "BBO'S Nonlinear Optical Phase Matching Properties", Laser focus, Vol. 23, No. 9, pp.88-100 (September 1987).
- 3) Alfano R. R. and Shapiro S. L., "Ultrashort Phenomena", Physics Today, Vol 28, No. 7, pp. 30-36 (July 1975).
- 4) Alfano R. R. and Shapiro S. L., "Ultrafast Phenomena in Liquids and Solids", Sci. Am., Vol. 228, No.6, p. 43 (June 1973).
- 5) Allario F., "NASA choose tunable solid-state lasers for future remote-sensing applications", Laser Focus, Vol. 24, No. 10 pp. 65-74 (October 1988).
- 6) Arecchi F. T. and Schultz-Dubois E.O., Laser Handbook, Vol. 2 (North-Holland, Great Britain, 1972).
- 7) Armstrong J. A. et al., "Interaction between light waves in a nonlinear dielectric", Phys. Rev. Letters, 127, 1918 (1962).
- 8) Arkhipkin V. G. and Popov, "Nonlinear Optics and Transformation of light in gases", Sov. Phys. USP, 30 (1988), pp.952-976 (November 1986).
- 9) Baer E., "Advanced Polymers", Sci. Am., Vol 255, No.4, pp.179 (October 1987).
- 10) Baird K. M., "Frequency measurement of optical radiation", Physics Today, Vol. 36, No. 1, pp. 52-57 (January 1983).
- 11) Bass M., et al., Phys. Rev. Lett., 9, 448 (1962).
- 12) Balwin G. C., Introduction to Nonlinear Optics, (Plenum, New York, 1969).
- 13) Betchel J. H. and Chraplyvy A. R., "Laser Diagnostics of Flames Combustion Products and Sprays", Proceedings of the IEEE, 70(6), p.658 (June 1982).
- 14) Bell T. E., "Optical Computing: A field in flux", IEEE Spectrum, pp. 34-37 (August 1986).
- 15) Bloembergen N., Nonlinear Optics (Benjamin, New York, 1967).
- 16) Bloembergen N. and Pershan P. S., "Light waves at the boundary of nonlinear media", Phys. Rev. Lett., 128, 806-822 (1982).

- 173 Bloembergen N. and Shen Y. P., "Quantum-Theoretical comparison of nonlinear susceptibilities in parametric media, Laser, and Raman lasers". Phys. Rev. Lett., 133, A37-A40 (1964).
- 193 Bloembergen N., "Preview of Nonlinear Optical Phenomena in condensed matter", en Quantum Optics, Kays E. M. and Maitland A. Eds. (Academic, New York, 1970).
- 199 Bloembergen N., "Nonlinear Optics", en Topics in Nonlinear Physics, Zabusky Ed. (Springer-Verlag, New York, 1969), pp. 425-484.
- 200 Betez D. and Hershowitz G. J., "Components for optical communications systems: A Review". Proceeding of the IEEE, Vol. 68, No. 6 (June 1980).
- 213 Braunstein R., "Nonlinear Optical Effects". Applied Phys. Lett., Vol. 125, No. 12, pp. 475-476 (January 1962).
- 220 Brewer P. S., "Coherent Optical Transients". Physical Today, Vol. 30, No. 5, pp. 50-52 (May 1977).
- 230 Caron A., "Le coupleur directif optique un composant universel". L'Espe des Recherches, no. 112 12^e trimestre 1983.
- 240 Carter G. and Zys J. Eds., "Nonlinear Optical processes in organic materials". Journal of Optical Society of America B, Vol. 4, No. 6, pp. 944-1053 (June 1987) (15 articles).
- 250 Craxton R. S., Mc. Crory K. L. and Soures J. M., "Progress in Laser Fusion". Sci. Am., 255(2), p. 68 (August 1986).
- 260 Chang W. S. C., Principles of Quantum Electronics: Laser theory and applications (Addison-Wesley, U.S.A., 1969).
- 270 Cotter D., Hanna D. C. and Wyatt R., "Infrared Stimulated Raman Generation: Effects of Gain Focussing on threshold and tuning behavior". Applied Physics, 8, 333-340 (1975).
- 280 Douglas Houston J. and Evans S. T. N., "Monitoring Aerosols Optically". Photonics Spectra, Vol. 21, No. 7, p. 99 (July 1987).
- 290 Electronics: "A special Report: The future of lasers". Physics Today, Vol. 25, No. 3, pp. 23-27 (March 1972).
- 300 Emmet J. L., "Frontiers of laser development". Physics Today, Vol. 24, No. 3, pp. 24-31 (March 1971).
- 310 Feinberg J., "Photorefractive nonlinear optics". Physics Today, Vol. 41, No. 10, pp. 46-52 (October 1989).
- 320 Feld M. S. and Letokhov V. S., "Laser Spectroscopy". Sci. Am., 229(6), p. 69 (December 1973).

- 33) Fowles G.R., Introduction to Modern Optics (Holt, Rinehart and Winston, New York, 1967), capitulo 5.
- 34) Franken P.D., Hill A.E., Peters C.W., and Weinreich G., Phys. Rev. Lett., 7, 118 (1961).
- 35) Gibbs W.E., "Excited state absorption in a saturable absorber," Appl. Phys. Lett., Vol. 11, No. 4, pp. 113-115 (August 1967).
- 36) Gilson W.E., Laser Raman Spectroscopy (Wiley-Interscience, London, 1970).
- 37) Giordmaine J.A., "Nonlinear Optics", Physics Today, 22(1) p. 38 (January 1969).
- 38) Giordmaine J.A., "Nonlinear Optics", Sci. Am., 210(4), p. 38 (April 1964).
- 39) Giuliano C.R., "Applications of optical phase conjugation", Physics Today, Vol. 34, No. 4, pp. 27-35 (April 1981).
- 40) Hänsch T.W., "High resolution spectroscopy of atoms and molecules", Physics Today, Vol. 30, No. 5, pp. 34-43 (May 1977).
- 41) Harper P., Nonlinear Optics (Academic, London, 1977).
- 42) Hausand H.A., Ippen E.P., et al. "Optical exclusive OR gate", Appl. Phys., B28 2/3 (1982).
- 43) Hecht E. and Zajac A., Optics (Addison-Wesley, U.S.A., 1974), capitulo 14.
- 44) Heller A., "Laser action in liquids", Physics Today, Vol. 20, No. 11, pp. 35-41 (November 1967).
- 45) Hercher M., "Single-Mode operation of a Q-switched ruby laser", Appl. Phys. Lett., 7, 2 (July 1965).
- 46) Hinkley E.D. Ed., Laser Monitoring of the atmosphere, Serie: Topics in Applied Physics (Springer-Verlag, Heidelberg Berlin, 1978) Cap. 5, p. 153.
- 47) Ippen E.P. and Shank C.V., "Subpicosecond Spectroscopy", Physics Today, Vol. 31, No. 5, pp. 41-47 (May 1978).
- 48) Jamerson F.E. and Muench N.L., "Physics and their work in the automotive industry", Physics Today, Vol. 34, 12, pp. 31-37 (December 1988).
- 49) Jha S.S. and Bloembergen N., "Nonlinear Optical susceptibilities in group IV and III-V semiconductors", Physical Review, Vol. 171, No. 3, pp. 891-898 (July 1969).
- 50) Johnson F.M., Stimulated Raman Scattering (SRS), en Handbook of laser, R.J. Presley Ed. (C.R.C. Press, U.S.A., 1971)

pp. 626-628.

- 51) Kleinman D.A., "Laser and Two Photon Processes", Physical Review, Vol. 125, No. 1, pp. 87-88 (January 1962).
- 52) Kleppner et al., "Atomic molecular and optical physics", Physics Today, (April 1986).
- 53) Letokhov V.S., Nonlinear laser Spectroscopy (Springer-Verlag, Berlin, 1977).
- 54) Leuchttag H.A., "Laser Research", Physics Today, Vol. 28, No. 11, pp. 65-69 (November 1975).
- 55) Levenson M.D., "Coherent Raman Spectroscopy", Physics Today, Vol. 24, No. 3, pp. 24-31 (March 1971).
- 56) Mayo J.S., "Material for information and communication", Sci. Am., 255(4), p. 59 (October 1986).
- 57) Matulic L., Sanchez Mondragon J.J. et al., "Propagación de pulsos en medios resonantes", Revista Mexicana de Física, Vol. 31, No. 2, pp. 259-301 (1985).
- 58) Michel A.E. and Nathan M.I., "Saturation of optical absorption in GaAs", Appl. Phys. Lett., Vol. 6, No. 8, pp. 101-102 (March 1965).
- 59) "News Lasers and Optics: sum-frequency approach efficiently generates tunable 190 nm output", Laser focus, Vol. 24, No. 7, (July 1988) pp. 22-23.
- 60) "News: Search & Discovery: 30 femtosecond light pulses at Bell Labs", Physics Today, Vol. 35, No. 12, pp. 19-21 (December 1982).
- 61) "News: Search & Discovery: Nobel Physics prize to Bloembergen; Schawlow and Siegbahn", Physics Today, Vol. 34, No. 12 (December 1981).
- 62) "Optical computing", Photonics Spectra, Vol. 21, No. 1, p. 106 (January 1987).
- 63) Orzag A., Les lasers (Masson, Paris, 1988), capitulo XII.
- 64) Pankove J.I., Optical processes in semiconductor (Dover, U.S.A., 1975), capitulo 12.
- 65) Pepper D.M., "Applications of optical phase conjugation", Sci. Am., 254(1), p. 74 (December 1985).
- 66) Pessall N et al., "Critical supercurrent in Niobium Carbonitrides", Appl. Phys. Lett., Vol 7, No. 2, pp. 39-40 (July 1965).
- 67) Rebbi C., "Solitons", Sci. Am., 241(2), p. 92 (February 1979).

- 68) Reintjes J.F., Nonlinear optical processes in liquids and gases (Academic, New York, 1984).
- 69) "Researching optical computing at UAH", Laser Focus, Vol.24, No.7 (July 1988).
- 70) Rowell J.M., "Photonics Material", Sci. Am., 255(4), p.147 (October 1986).
- 71) Sandle W.J., "Experiments on optical bistability", en Laser Physics, D.F. Walls and J.D. Harvey Eds. (Academic, Australia, 1986), pp. 225-239.
- 72) Schawlow A.L., "Lasers and Physics: A pretty good hint", Physics Today, Vol. 35, No. 12, pp.48-51 (December 1982).
- 73) Schechter, "Atomic molecular and optical physics", Physics Today, Vol.39, No.4 (April 1986), pp.35-37.
- 74) Shapiro S.L. Ed. Ultra short light pulses (picosecond techniques and applications) serie: Topics in Applied Physics, Vol 16 (Springer-Verlag, Berlin, 1977), Caps. 1y4.
- 75) Shen Y.R., Nonlinear Infrared Generation, serie: Topics in Applied Physics, Vol. 16 (Springer-Verlag, Berlin, 1977).
- 76) Shkunov V.V. and Zel'dovich B.Y., "Optical Phase Conjugation", Sci. Am., 253(6), p. 54 (December 1985).
- 77) Sing, "Non-Linear Optical Materials", en Handbook of Laser, R.J. Presley Ed. (C.R.C Press, U.S.A., 1971), pp. 489-525.
- 78) Smith P.W. et al, "Integrated bistable optical devices", Appl Phys. Lett., 33(1) (July 1978).
- 79) Sorokin P.P. et al, "Rubi Laser Q-switching elements using phthalocyanine molecules in solution", IBM Journal, No.8, pp. 182-184 (April 1964).
- 80) Steppaerts E.A. Ed., "Stimulated Raman and Brillouin scattering for laser beam control", Journal of Optical Society of America B, Vol. 3, No. 10, pp. 1331-1497 (October 1986) (18 articulos).
- 81) Stegeman G.I. and Seaton C.T., "Nonlinear Integrated Optics", J. Appl. Phys., 58(12), R57-R58 (1985).
- 82) Stegeman G.I. and Stolen R.H. Eds. "Nonlinear guided-wave phenomena", Journal of Optical Society of America B, Vol. 5, No. 2, pp. 264-571 (February 1988) (39 articulos).
- 83) Stickley C.M., "Laser fusion", Physics Today, (May 1978).
- 84) Stolen R.H. and de Paula R.P., "Single Mode Fiber Components", Proceedings of the IEEE, Vol 75, No.11 (November 1987).

- 85) Tien P. K., "Integrated Optics", Sci. Am., 230 (4), p.28 (April 1974).
- 86) "30 femtosecond light pulses at Bell Labs", Physics Today (December 1982).
- 87) "The future of laser", Physics Today (March 1972).
- 88) Wang C.C. and Racette G.W., "Effect of linear absorption on self-focusing of laser beam in CS_2 ", Appl. Phys. Lett., Vol. 8, No.10, pp. 256-257 (May 1986).
- 89) Whiffen D.H., Spectroscopy (Longmans Green, London, 1968).
- 90) Wynne J.J., "Optical third order mixing in GaAs, Ge, Si and InAs", Physical Review, Vol.178, No. 3, pp. 1295-1303 (February 1989).
- 91) Yariv A., "La óptica de ondas guiadas", Investigación y Ciencia, No.30, p.38 (Marzo 1979).
- 92) Yariv A., Introduction to optical electronics (Wiley, New York, 1967).
- 93) Yariv A., Quantum electronics (Wiley, New York, 1967).
- 94) Yariv A., Quantum electronics (Wiley, New York, 1975).
- 95) Young A.T., "Rayleigh Scattering", Physics Today, Vol.35, No.1 (January 1982).
- 96) Zernike F. and Midwinter J.E., Applied Nonlinear Optics (Wiley, New York, 1973).