

28
201



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA
DE MEXICO

FACULTAD DE CIENCIAS

USO DE UN OSCILADOR PARAMETRICO
BOMBEADO POR UN LASER Nd:YAG PARA
IDENTIFICAR NIVELES DE ENERGIA EN Xe POR
IONIZACION MULTIFOTONICA RESONANTE

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

ANTONIO MARCELO JUAREZ REYES



MEXICO, D. F.

FACULTAD DE CIENCIAS
SECCION ESCOLAR

1987

TESIS CON
FALLA DE ORIGEN



Universidad Nacional
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

Biblioteca Central



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 esta 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.



UNIVERSIDAD NACIONAL
AVENENCIA DE
MÉXICO

M. en C. Virginia Abrín Batule
Jefe de la División de Estudios Profesionales de la
Facultad de Ciencias
P r e s e n t e

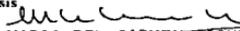
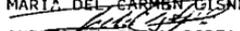
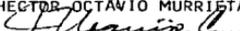
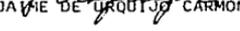
Comunicamos a usted que hemos revisado el trabajo de Tesis:
"Uso de un Oscilador Paramétrico Bombeado por un Laser Nd:YAG para Identificar
Niveles de Energía en Xe por Ionización Multifotónica Resonante"

realizado por JUAREZ REYES ANTONIO MARCELO

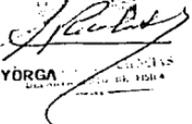
con número de cuenta 9251783-1 , pasante de la carrera de Física.

Dicho trabajo cuenta con nuestro voto aprobatorio.

Atentamente

Director de Tesis
Propietario 
DRA. MARIA DEL CARMEN CISNEROS GUDINO
Propietario 
FIS. ANDRES VALENTIN PORTA CONTRERAS
Propietario 
DR. HECTOR OCTAVIO MURRIETA SANCHEZ
Suplente 
DR. JAIME DE URQUIJO CARMONA
Suplente 
DR. RAMIRO GARCIA GARCIA


Consejo Departamental de Física


DR. ROBERTO ALEJANDRO RUELAS MAYÓRGA
Coordinador de Licenciatura

**"USO DE UN OSCILADOR PARAMÉTRICO BOMBEADO
POR UN LASER Nd:YAG PARA IDENTIFICAR
NIVELES DE ENERGÍA EN Xe POR IONIZACIÓN
MULTIFOTÓNICA RESONANTE"**

Antonio Marcelo Juárez Reyes

Director de Tesis

Dra. Carmen Cisneros Gudiño

FACULTAD DE CIENCIAS, UNAM
1997

AGRADECIMIENTOS.

La realización de el presente trabajo ha sido posible gracias al apoyo y ayuda de varias personas del Laboratorio de Colisiones del IFUNAM, en Cuernavaca. En particular quiero expresar mi agradecimiento a la Dra. Carmen Cisneros y al Dr. Ignacio Álvarez por el apoyo incondicional, por la confianza y amistad que me brindaron durante el tiempo que duró el proyecto de mi tesis y mi estancia en el laboratorio de Cuernavaca. Quiero mencionar tambien la ayuda y el apoyo proporcionados por el Dr. Farook Yousif y el Dr. Jaime de Urquijo durante este trabajo de tesis , así como sus sugerencias y comentarios.

Agradezco al Ing. Armando Bustos y al Técnico Samuel Pérez por la construcción de varios elementos de electrónica que permitieron llevar a cabo la construcción del espectrómetro .

Quiero agradecer también al Mtro. Guillermo Hinojosa por su ayuda tan oportuna en lo referente a programas, manejo de datos y gráficas y por ayudar con su humor constante a que mi estancia en el laboratorio fuera más agradable.

Este trabajo fue posible gracias al apoyo del Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACYT) y la D.G.A.F.A , UNAH.

Dedicatorias

Podría decir que cargo siempre conmigo un gran orgullo de saber que a mi lado hay mucha gente que no sólo es valiosa y especial, sino que, si no fuera ya eso suficiente, me profesan además mucho cariño. Pero prefiero decir, simplemente, que la presencia a mi lado de esta gente me causa mucha alegría. Esto es por que el orgullo puede ser a veces inmerocido pero la alegría nunca lo es. Así es que por esta alegría que me dan quiero dedicar esta tesis a algunas personas que están y estarán siempre cerca de mi, aunque la distancia quiera alguna vez decirles lo contrario:

A una Flor muy querida que traigo siempre cerca de mi corazón. A la que me ha mostrado, con su ejemplo, que hace bien llevar mucha fe, trabajo y buena esperanza en las alforjas para andar bien la jornada que nos toca recorrer. A la que me ha enseñado que aunque alguna vez se camine por cañadas oscuras no hay que temer, por que nunca está uno solo. A la que me regala con su presencia y su cariño la certeza de que soy muy afortunado y de que la vida es algo maravilloso y bueno. A una mujer muy especial, a quien quiero con toda mi alma dedico en primer lugar esta tesis: a mi madre.

A mis hermanos, es decir, al numeroso, alegre, querido clan que ha compartido conmigo no solo el largo y accidentado proceso de crecer y volverse "gente grande", el pan cotidiano, las confidencias, los juegos, algunas dificultades y muchas alegrías, sino que comparten conmigo también la incorregible costumbre de soñar y de tener esperanza. A cada uno de ustedes, hermanos, dedico con mucho cariño esta tesis. Se las doy de corazón. En especial a mi Male, por el cariño tan especial que siempre me ha mostrado.

A mis amigos, cómplices conmigo de esta alegre desfachatez de ser jóvenes, con los que en algún lugar, sin gran protocolo, he logrado construir varias veces el milagro de coincidir: A mi querida Subcomandante Peque, por su inigualable don de compartir libros, sueños y risas, por el profundo sentido que le da a la palabra amistad; a Alex, con quien compartí el entrañable rincón de casa Mulata, varias historias y el buen tiempo que ha significado estar en Cuerna; al Peti, por esas largas horas de platicar con que varias veces hemos despedido al sol, por la especial manera que tienes, hermano, de reírte de lo solemne; a la León, por su gran corazón, por su hermosa sonrisa, por su carromato y los viajes con noche y canciones hacia los sueños; a la Burocracia Buena por su especial encanto, por su complicidad con la luna, los atardeceros y los suspiros; a Benjas y a Lara, por su buena vocación de ser amigos, por su hospitalidad de varias veces en la casa de la montaña; a Chava, al querido amigo con quien dejé andando por los caminos de la Mixteca la adolescencia, las noches de guitarra y los primeros sueños. A todos ustedes, con quienes he compartido sonrisas, bailes, tendidos, viajes y a veces lágrimas; a los que imaginaron con fuerza un lugar y un tiempo para reunirnos, a ustedes amigos, a los que quiero tanto dedico también esta tesis.

AGRADECIMIENTOS

DEDICATORIAS

ÍNDICE

INTRODUCCIÓN

I.1

Capítulo I:

CONCEPTOS BÁSICOS Y MODELOS PARA LA IONIZACIÓN MULTIFOTÓNICA

1	Introducción	1
2	Procesos con 1 fotón	2
3	Ionización Multifotónica No-Resonante	4
4	Ionización Multifotónica Resonante	5
5	Teoría tradicional de perturbaciones.	7
6	Conceptos básicos para la teoría de campos intensos	12
	6.1 El operador de evolución temporal.	
	6.2 El esquema de interacción.	
	6.3 Forma explícita de algunos operadores.	
7	Algunos modelos para interacciones de intensidad alta.	17
	7.1 El método de Bebb y Gold	
	7.2 Otros métodos	
	(a) El método de resolventes	
	(b) Modelo vectorial de Bloch-Feynman	

Referencias

24

Capítulo II

ASPECTO EXPERIMENTAL

1	Introducción	26
2	Técnica	27
3	Elementos del espectrómetro	29
	3.1 La fuente de haces	
	3.2 El sistema de vacío	
	3.3 Relación carga-masa y tiempo de vuelo	
	3.4 Sistema de detección	
	3.5 Sistema escalador multicanal	
	3.6 Sincronía de los elementos del espectrómetro	
4	El sistema YAG:MOPO	40
	4.1 El laser de Nd:YAG	
	4.2 El MOPO	
	(a) Proceso de conversión paramétrica	
	4.3 Arreglo óptico	
	Referencias	49

Capítulo III

IONIZACIÓN MULTIFOTÓNICA EN XENON.

1	Introducción	50
2	Descripción del experimento	50
	2.1 Elección del Xenón	
	2.2 Preparación y operación del sistema	
3	Espectros en tiempo de vuelo y frecuencia	54
4	notación y reglas de selección	58
5	Identificación de estados	63
6	Conclusiones	64

Apéndice A

SOBRE EL PROCESO DE CONVERSIÓN Ó GANANCIA PARAMÉTRICA

A.1	Introducción	a.1
A.2	Ecuaciones de campo en un material no-lineal	a.1
A.3	Las condiciones de Manley-Rowe	a.4
A.4	Ganancia paramétrica en un oscilador	a.7
A.5	Proceso de sincronía dependiente del ángulo	a.8

Referencias

a.11

INTRODUCCIÓN

El estudio de la interacción de radiación electromagnética laser de intensidades medias y altas con sistemas cuánticos (átomos, moléculas, iones) ha dado lugar a un conjunto de estudios, relativamente nuevos en la física, englobados en el concepto general de espectroscopía laser no-lineal. El estudio experimental de estos procesos sólo ha podido llevarse a cabo con el desarrollo relativamente reciente de fuentes laser con propiedades muy particulares como las que permiten variar la longitud de onda con gran precisión en intervalos amplios del espectro electromagnético, de generar pulsos de luz de gran coherencia espacial en intervalos de tiempo muy cortos y de obtener haces de gran intensidad. Con el uso de estas fuentes se ha podido hacer evidente una gran variedad de efectos y fenómenos en sistemas atómicos que no se habían estudiado experimentalmente, tales como la fluorescencia inducida, la ionización por tunelaje, la generación de armónicos y los procesos de ionización multifotónica [i.1].

Este trabajo está dedicado al estudio de uno de uno de los procesos arriba mencionados, conocido como Ionización Multifotónica Resonante (IMR) que es aquél, como se detallará en la parte correspondiente a los conceptos básicos, en el cual un sistema atómico es excitado a un nivel particular por la absorción de un número (N) de fotones e ionizado a partir de éste estado excitado por la absorción de otro número (M) de fotones cuando el sistema interactúa con un campo radiante muy intenso. Este campo lo proporciona un sistema compuesto por un laser Nd:YAG en línea con un oscilador paramétrico conocido como MOPO (por sus siglas en Inglés). Otros objetivos importantes que se busca cumplir en este

trabajo son los siguientes: describir el arreglo experimental que se diseñó y construyó para identificar por medio de la IMR algunos estados excitados del gas Xenón y mostrar los principios físicos bajo los cuales opera el sistema de radiación que se utilizó para estos estudios, en particular del oscilador paramétrico.

A fin de presentar en un orden lógico las características, ideas y conceptos básicos asociados al fenómeno de ionización multifotónica resonante, se inicia este trabajo (capítulo I) con la explicación general de los fundamentos de la interacción entre el campo electromagnético y un sistema atómico; se hace el planteamiento del problema formal desde el punto de vista de la mecánica cuántica y se presenta descripción general de los distintos modelos teóricos que se han propuesto para resolver tal problema. En particular se describe un método basado en el formalismo del operador de evolución. Se pretende que este capítulo, aparte de presentar de manera global las ideas básicas del fenómeno, proporcione también las suficientes referencias bibliográficas y conceptos que sirvan de punto de partida para estudios ulteriores y mas profundos en la teoría. Los problemas que plantea la interacción de campos intensos con sistemas atómicos ó moleculares es un tema abierto de investigación por lo que incluso el desarrollo formal de uno solo de los esquemas de solución de entre la gran variedad de los que se han propuesto iría mas allá de los objetivos de esta tesis. Sin embargo la presentación de un panorama general de la teoría que se usa para explicar estos fenómenos y un conjunto de referencias bibliográficas extenso y representativo son muy valiosos, sobre todo en esta etapa inicial del desarrollo de la técnica, por lo que se han incluido en este capítulo.

El capítulo II presenta las distintas componentes del arreglo experimental que se diseñó y construyó para observar la ionización multifotónica y que consiste en una fuente de radiación sintonizable (MOPO) y de un espectrómetro de masas dotado de un

novedoso sistema de detección . Se describen también la sincronía y la relación entre las distintas partes constituyentes del espectrómetro así como la técnica en la que basa su operación, denominada de tiempo de vuelo, y que permite distinguir la relación carga-masa de los iones formados por absorción multifotónica en función del tiempo de vuelo de éstos.

En el capítulo III se presentan las primeras pruebas de ionización multifotónica resonante en Xenón que se han obtenido utilizando el sistema experimental descrito. Se muestran los primeros espectros de tiempo de vuelo que se obtuvieron y, a partir de ellos, se presentan espectros de señal de iones en función de la longitud de onda de la luz. Se discute la identificación los niveles de excitación a partir de los cuales ocurre la ionización multifotónica en ese gas y se hace una discusión de la nomenclatura usada para identificar esos niveles de energía, así como de la relación entre la paridad de las funciones de estado asociadas a tales niveles y las reglas de selección para transiciones multifotónicas.

Finalmente, en el apéndice A se presenta un breve estudio de las ecuaciones de Maxwell en un medio no lineal y su relación con el proceso de oscilación paramétrica; se discuten las condiciones mínimas en potencia que debe satisfacer el láser de bombeo para producir el fenómeno de conversión no lineal y se obtiene una expresión para la variación de la frecuencia en función del ángulo de orientación del cristal respecto al campo. La razón de incluir este apéndice obedece al hecho de que, siendo el MOPO un elemento tan novedoso en cuanto a su funcionamiento , y tan importante en cuanto a su uso en el arreglo experimental, resulta conveniente tener un conocimiento más profundo del principio físico en el que basa su funcionamiento.

Referencias

- [i.1] Levenson M.D., Kano S., *Nonlinear Laser Spectroscopy*, Academic Press, London (1988).

CAPÍTULO I

CONCEPTOS TEÓRICOS Y MODELOS BÁSICOS DE LA IONIZACIÓN MULTIFOTÓNICA RESONANTE (IMR)

1. Introducción

En éste capítulo se presentan algunos conceptos básicos de la teoría de interacción de campos electromagnéticos con sistemas atómicos iniciando con la descripción, desde un enfoque fenomenológico, de procesos que involucran un fotón (campo electromagnético pequeño); para describir después los que involucran varios fotones. El propósito de presentar ambos procesos y no sólo el multifotónico es el de poner en relieve las características de los fenómenos multifotónicos teniendo como referencia las de los que involucran un solo fotón. En las secciones posteriores de este capítulo se hace el planteamiento formal de éstos problemas así como las predicciones que se obtienen para la probabilidad de transición entre dos niveles atómicos a partir de distintos modelos y aproximaciones. Para las transiciones con un fotón se discute la teoría tradicional de perturbaciones dependiente del tiempo, y para el caso multifotónico se presentan algunos conceptos básicos, la forma específica de algunos operadores y algunos modelos avanzados. En particular se describe el método de Bebb y Gold [1.1], basado en una expresión integral para el operador de evolución. También se describen, aunque de manera muy general dos modelos muy usados en la teoría de interacciones de átomos y campo: El método de resolventes y el

modelo de Bloch-Feynman.

2. Procesos con un fotón

Entre las primeras predicciones verificables de la teoría cuántica antigua, sobresale la hecha por Niels Bohr referente a la energía que emite un sistema atómico cuando ocurre una transición de un estado $|2\rangle$ a un estado $|1\rangle$ y que se expresa por medio de la conocida relación

$$E_2 - E_1 = h\nu_{21} \quad (1.1)$$

En donde ν_{21} es la frecuencia del fotón que se emite en la transición y h es la constante de Planck.

Recíprocamente, si un sistema se encuentra en el estado $|1\rangle$ y

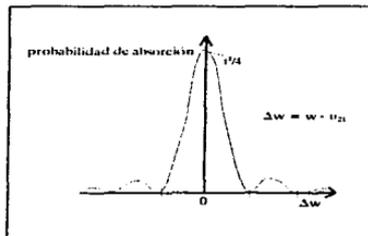


Fig 1.1a probabilidad de transición del estado 1 al 2 en función de la frecuencia

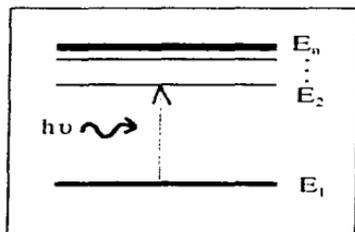


Fig 1.1b Representación de la transición del estado 1 al 2 por un fotón

se le hace interactuar con una onda electromagnética de frecuencia ν , existe una probabilidad alta de que el sistema atómico sufra una transición y ocupe el estado E_2 . Con el desarrollo ulterior de la mecánica cuántica, estos resultados semiempíricos encontraron fundamento en el formalismo de Schrödinger basado en el desarrollo temporal de funciones de onda, y en el de Heisenberg, basado en la evolución de operadores asociados a observables físicas.

Con estos formalismos, además de predecir el carácter discreto de los niveles de energía de los sistemas atómicos ó moleculares, se puede estimar la probabilidad P_{12} de que un sistema que se encuentra inicialmente en un estado $|1\rangle$ cambie al estado $|2\rangle$ durante ó después de interactuar con el campo electromagnético, basados la teoría de perturbaciones dependiente del tiempo. En la figura I.1a e I.1b se muestra la dependencia en frecuencia para transiciones de un solo fotón y la representación gráfica de la excitación entre dos niveles de un sistema atómico.

Conviene hacer aquí la aclaración (ec. 1.10), que la dependencia de la probabilidad de transición en función de la frecuencia del campo que se ilustra en la gráfica (I.1a), es válida siempre que la intensidad del campo que perturba al sistema atómico sea despreciable respecto a los campos internos del átomo. Para campos no muy intensos se puede ver que la absorción es máxima cuando la energía del fotón es igual a la energía que separa los dos niveles. La probabilidad de absorción para frecuencias distintas de la de resonancia es despreciable comparada a la probabilidad de la transición a la frecuencia de resonancia. En el caso que la energía del fotón sea mayor o igual que el potencial de ionización (P.I.) del átomo existe una alta probabilidad de que el átomo se ionice, es decir, que alcance un estado en el continuo. La ionización no ocurre si se tiene un haz de baja intensidad y si la frecuencia del fotón es menor que el P.I. Se verá en la sección siguiente que la situación puede cambiar si la intensidad del haz

es suficientemente grande pues, por la absorción de varios fotones, se puede lograr la ionización aunque la energía individual de cada fotón no sea suficiente .

3. Ionización multifotónica no resonante

Con el uso de fuentes laser se pueden alcanzar intensidades tan altas que la aproximación de campo electromagnético poco intenso ya no es válida y la dependencia de la probabilidad de excitación o de ionización, en su caso, pueden comportarse de manera distinta , dando lugar a fenómenos que no se pueden explicar con esta aproximación. Un ejemplo dramático de lo anterior [1.2]

puede observarse cuando un pulso de laser Nd:YAG con salida de 10^8 W/cm² de intensidad y que emite fotones con frecuencia de 1064 nm se enfoca en el aire. Una luz azulada, acompañada de un fuerte ruido se observa de inmediato en el punto de enfoque, mientras se emite radiación ultravioleta y de rayos x y el aire circundante se ioniza. La energía individual de cada fotón a la salida del YAG es de alrededor de 1.1 eV, mientras que el potencial de ionización del oxígeno y nitrógeno moleculares es de 12.5 y 15.5 eV , respectivamente. La energía individual de cada fotón que sale del YAG es bastante menor que la energía necesaria para ionizar a cualquiera de las dos especies que componen al aire de donde se puede inferir, entonces, que para que este tipo de efectos ocurran, los átomos y moléculas del aire tienen que absorber varios fotones. La figura (I.2) ilustra este proceso, conocido como absorción multifotónica no resonante.

Aunque es claro que el proceso de ionización que ocurre al enfocar el laser Nd:YAG en el aire se debe a la absorción de varios fotones, la

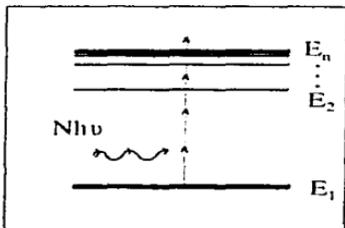


Fig. I.2 representación gráfica del proceso de ionización multifotónica No-Resonante

descripción mecánico-cuántica del proceso de absorción múltiple de fotones requiere de técnicas muy elaboradas, algunas de las cuales se describen en secciones posteriores de este mismo capítulo. El hecho de que las transiciones multifotónicas no se puedan observar en condiciones normales, con fuentes de luz poco intensas, se debe a que la probabilidad de que estos procesos ocurran comparada con la probabilidad para transiciones de un sólo fotón, es muy pequeña por lo que, para poder observarlas, es necesario usar fuentes de luz muy intensas (del orden de 10^{11} W/cm² para el visible). Algunos aspectos importantes de la ionización multifotónica no resonante se pueden encontrar en la referencia [1.3]

4. Ionización Multifotónica Resonante

Existe un caso de ionización multifotónica en que las transiciones son más probables y ocurre cuando, en el proceso de absorción, la energía de los fotones que interactúan con el sistema atómico es un divisor entero de la energía de algún nivel permitido del átomo. De esta manera el átomo alcanza un estado estable con tiempo de decaimiento largo (10^{-8} s) comparado con el tiempo característico de absorción (10^{-12} s). A partir de este estado y si se siguen absorbiendo fotones, entonces existe la probabilidad de que el átomo se ionice, pues para alcanzar el continuo, el átomo sólo tiene que absorber un número comparativamente pequeño de fotones a partir del estado excitado. Cuando el ajuste en la frecuencia de los fotones respecto a la energía entre dos niveles ocurre, se habla de Ionización Multifotónica Resonante (IMR). La figura (I.3) representa gráficamente este proceso. Aunque la probabilidad para transiciones multifotónicas resonantes es mayor que para el caso no resonante, es necesario aún usar potencias elevadas (10^8 W/cm²) en el haz de fotones. Lo anterior establece dos condiciones para la fuente de luz: que proporcione alta potencia y que, además, permita variar la longitud de onda de la luz con suficiente precisión. Se verá en capítulos posteriores que el sistema YAG-

MOPO satisface ampliamente esos requerimientos.

Las transiciones en que intervienen varios fotones fueron predichas por primera vez por Maria Göppert-Mayer en 1931, en su tesis doctoral, en Göttingen.

Una de sus predicciones fue el decaimiento espontáneo en dos fotones del estado excitado metaestable $2S_{1/2}$, del hidrógeno con una tasa de decaimiento que, aunque pequeña, era mayor a cualquier otro mecanismo de decaimiento para esa transición, prohibida por la paridad de las eigenfunciones para la transición de 1 fotón, pero permitida para aquellas que involucraran 2 fotones. Este tipo de decaimiento se observó posteriormente en el núcleo de nebulosas gaseosas a millones de años luz de distancia de nuestro planeta.

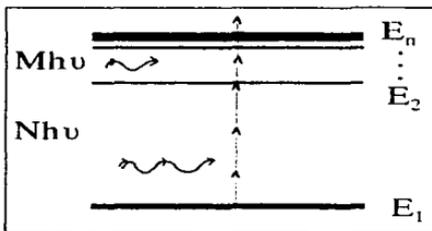


Fig. 1.3 Representación gráfica del proceso de Ionización Multifotónica Resonante

La primera observación de una transición multifotónica inducida en la Tierra, fue hecha de manera accidental en 1950 por Hughes y Grabner, quienes, al excitar moléculas de Fluoruro de Rubidio por medio de radiofrecuencia, encontraron transiciones inesperadas con la mitad de la energía de fotón que podría causar tal tipo de excitaciones. Rabi, físico teórico cuyas contribuciones habían permitido entender los fenómenos de resonancia paramagnética electrónica, sugirió que se trataba de un proceso de absorción de dos fotones, aseveración que encontró sustento posteriormente con un gran conjunto de experimentos y medidas hechas para verificar sus predicciones.

Posteriormente se observó que, cuando la energía de uno de los

fotones era igual a la de un estado excitado del átomo, entonces el proceso de ionización con dos fotones se veía altamente favorecido. A este tipo de procesos se les denominó "resonantes". En todas estas observaciones se utilizó la única fuente de radiación intensa de que se disponía: la de campos de radiofrecuencia. Tan pronto como la radiación laser estuvo disponible se han observado transiciones en las no sólo dos, sino 4 , 8 o más fotones son absorbidos se han observado. Como se verá en las conclusiones al final del capítulo 3 de este trabajo, en la ionización del Xe en las frecuencias elegidas se absorbieron 5 fotones.

5. Teoría tradicional de perturbaciones

Considérese un sistema atómico representado por su Hamiltoniano H_0 , independiente del tiempo, con eigenvalores E_n y eigenvectores $|\phi_n\rangle$ tales que satisfacen la ecuación :

$$H_0|\phi_n\rangle = E_n|\phi_n\rangle \quad (1.1)$$

Si al tiempo $t=0$ se aplica una perturbación $V(t)$ que se puede denotar como $\lambda W(t)$, el Hamiltoniano del sistema perturbado será entonces:

$$H(t) = H_0 + \lambda W(t) \quad (1.2)$$

Si se supone que λ es un parámetro real mucho menor que 1 entonces el problema esta definido: determinar la función de estado

del nuevo Hamiltoniano $H(t)$ y usar los postulados de la mecánica cuántica para obtener el valor de las distintas cantidades medibles del sistema, como la probabilidad de transición para dos niveles del átomo, que son las que interesan de manera particular en éste trabajo.

Es decir, que es necesario determinar el vector de estado $|\psi(t)\rangle$ que satisfaga la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(x, t)\rangle = [H_0 + \lambda W(t)] |\psi(x, t)\rangle \quad (1.3)$$

Si la perturbación se activa al tiempo $t=0$, y antes de este tiempo el sistema se encuentra en algún estado específico $|\phi_i\rangle$, entonces, en el caso que se desee conocer la probabilidad de transición del estado $|\phi_i\rangle$ a otro estado particular $|\phi_j\rangle$, se tiene que evaluar el producto interior siguiente:

$$P_{ij} = |\langle \phi_j | \psi(t) \rangle|^2 \quad (1.4)$$

Dado que las eigenfunciones $|\phi_n\rangle$ constituyen una base, el vector de estado $|\psi(t)\rangle$ se puede desarrollar de la siguiente forma:

$$|\psi(t)\rangle = \sum c_n(t) |\phi_n\rangle \quad (1.5)$$

Sustituyendo las expresiones anteriores en la ecuación (1.3) y proyectando ambos lados de dicha ecuación sobre el estado $|\phi_n\rangle$, se obtiene el siguiente conjunto de ecuaciones diferenciales acopladas

de primer orden:

$$i\hbar \frac{d}{dt} c_n(t) = E_n c_n(t) + \sum_k \lambda W_{nk}(t) c_k(t) \quad (1.6)$$

La solución de este tipo de ecuaciones se trata en la mayor parte de libros de mecánica cuántica [1.4] , [1.5] , por lo que aquí sólo se describirá brevemente el método y la solución a primeros ordenes.

Los coeficientes $C_k(t)$ se obtienen a partir de un desarrollo en series de potencias de λ , haciendo uso del coeficiente $C_k(t=0)$ y de un proceso de iteración de soluciones, es decir, que para obtener el coeficiente c_i de orden n , se usan los coeficientes c_j de orden $(n-1)$. Una vez que se ha hecho esto , se puede probar que, considerando la solución a orden 2, la expresión para la probabilidad de transición está dada de la siguiente manera:

$$P_{if} = \frac{1}{\hbar^2} \left| \int e^{i\omega_{fi}t'} V_{fi}(t') dt' \right|^2 \quad (1.7)$$

donde ω_{fi} es la frecuencia de Bohr, dada por $(2\pi/\hbar) (E_f - E_i)$ y V_{fi} es el elemento de matriz del operador $V(t)$ en términos de los eigenvectores del estado final e inicial:

$$V_{fi} = \langle \phi_f | V(t) | \phi_i \rangle \quad (1.8)$$

Si se considera ahora que la perturbación tiene la forma $V(t) = V \cos(\omega t)$ donde V es una observable independiente del tiempo, como

por ejemplo, el potencial vectorial de un haz monocromático de luz; entonces se puede probar que la probabilidad de transición toma la forma siguiente:

$$P_{fi}(\tau, \omega) = \frac{|V_{fi}|^2}{4\hbar^2} \left| \frac{1 - e^{i(\omega_{fi} - \omega)\tau}}{\omega_{fi} - \omega} + \frac{1 \cdot e^{i(\omega_{fi} + \omega)\tau}}{\omega_{fi} + \omega} \right|^2 \quad (1.9)$$

Antes de iniciar la discusión del sentido físico de la expresión (1.9), conviene hacer algunos comentarios respecto a las aproximaciones que se hacen para llegar a ella. En primer lugar, dado que se ha pedido explícitamente que el hamiltoniano perturbativo sea muy pequeño comparado con el del átomo, entonces la validez de las expresiones arriba escritas se reduce a interacciones de átomos con campos débiles. En segundo lugar, la iteración que se hace para obtener los coeficientes en órdenes superiores a partir de los coeficientes de órdenes menores limita la validez de las expresiones (1.7) y (1.9) a tiempos de interacción cortos del campo con el sistema atómico, pues si se quisiera considerar que pasa a tiempos mayores tendríamos que hacer un desarrollo a órdenes superiores. Finalmente, la obtención de estos coeficientes está basada en el supuesto de que la función de estado final se puede expresar en términos de la base $|\phi_n\rangle$, lo que tácitamente implica que las eigenfunciones así como los eigenvalores del hamiltoniano no perturbado siguen siendo las mismas durante la interacción. Conviene aquí aclarar que ésta última suposición no es válida cuando el campo alcanza intensidades muy altas, pues se ha observado que existen efectos de ensanchamiento y corrimiento en la energía de las líneas atómicas, conocido como efecto Stark dinámico. En la referencia [1.6] se puede encontrar una discusión general de algunos de éstos efectos. Para discusiones más especializadas referirse al capítulo 2 de [1.4] y a [1.7].

La expresión (1.9) está compuesta por la suma del cuadrado del

módulo de dos términos complejos y el segundo sumando se hace muy grande cuando la frecuencia de la onda perturbativa es cercana a la frecuencia de Bohr. En vista de lo anterior la expresión (1.9) se puede simplificar hasta obtener:

$$P_{if} = \frac{|V_{if}|^2}{\hbar^2} \left| \frac{2 \sin(\omega_{fi} t / 2)}{\omega_{fi} - \omega} \right|^2$$

(1.10)

La expresión (1.10) es justo la que se representa esquemáticamente en la fig. (I.1a) de la introducción de este capítulo y refleja, como se mencionó *que la probabilidad más alta de transición entre dos niveles ocurre cuando la frecuencia del foton que perturba es igual o cercana a la frecuencia de Bohr entre los dos niveles*. Este cálculo refleja el fenómeno de absorción resonante con 1 foton. Como se verá mas adelante, existen absorciones resonantes (aunque mucho menos probables que la anterior) de varios fotones y eso constituye el fenómeno de absorción multifotónica resonante. Uno de los objetivos más importantes del presente trabajo consiste en observar de manera experimental el proceso de absorción multifotónica resonante que conduce a la ionización de la especie bajo estudio.

Finalmente , respecto al desarrollo que conduce a la expresión (1.10) la forma explícita del Hamiltoniano y del campo dependen de los problemas particulares que se quieran atacar. Para tratamientos más detallados es necesario representar de forma específica los operadores. En la referencia [1.8] se presenta una revisión exhaustiva de la deducción de la forma de operadores específicos. En secciones posteriores se tendrá la oportunidad de presentar la forma explícita de los operadores de campo, en el esquema de segunda cuantización; del átomo y de la interacción entre ambos (sección 3).

6. Conceptos básicos para la teoría de campos intensos.

En esta sección se presentan algunas definiciones y conceptos que se utilizan de manera frecuente en la teoría de interacciones. Es conveniente tener alguna familiaridad con ellos a fin de entender la notación y las ideas que se usan en los distintos modelos de interacción radiación materia. Aunque sólo el operador de evolución será usado de manera explícita en las secciones posteriores se introducen algunas otras definiciones que aparecen frecuentemente en tratamientos de este tipo .

6.1 El operador de evolución temporal

El operador de evolución temporal $U(t, t_0)$, usado de manera común en la teoría de interacción para campos intensos, se define formalmente de la siguiente manera:

$$|\psi(t)\rangle = U(t, t_0) |\psi(t_0)\rangle \quad (1.11)$$

Así, si se desea conocer la función $|\psi(t)\rangle$, y si se conoce la función $|\psi(t_0)\rangle$ para un tiempo inicial t_0 , entonces, por medio del operador de evolución se puede obtener la función de onda para todos los tiempos. El problema consisten evaluar en forma explícita este operador ó sus elementos de matriz así como su dependencia con el tiempo. En la sección siguiente se discutirá la técnica de Bebb y Gold que permite obtener el operador de evolución a partir de una expresión integral y de un esquema de iteraciones a distintos órdenes. Ésta sección sólo se describirán algunas propiedades de este importante operador.

Si se supone que los eigenestados de el sistema bajo estudio forman una base ortonormal, entonces se puede expresar cualquier estado a partir de ésa base, es decir que:

$$U(t, t_0) |\psi_j(t_0)\rangle = \sum_k a_k |\psi_k(t)\rangle \quad (1.12)$$

donde a_i está dado por:

$$a_i = \langle \psi_i(t) | U(t, t_0) | \psi_j(t_0) \rangle \quad (1.13)$$

Si se quiere conocer la probabilidad que el sistema pase del estado $|\psi_i(t_0)\rangle$ al estado $|\psi_i(t)\rangle$, entonces ésta será el cuadrado del coeficiente a_i correspondiente:

$$P_{i,j} = |a_i|^2 = |\langle \psi_i(t) | U(t, t_0) | \psi_j(t_0) \rangle|^2 \quad (1.13a)$$

Adicionalmente se puede probar [1.9] que el operador de evolución tiene las siguientes propiedades:

a) es unitario :

$$U^\dagger U = 1 \quad (1.14)$$

(U^\dagger es el conjugado hermitiano)

b) cuando el hamiltoniano H no depende del tiempo, entonces, por integración directa de la ecuación (1.3) la función de estado puede expresarse de la siguiente manera:

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iH(t-t_0)/\hbar} |\psi(t_0)\rangle \quad (1.15)$$

si se compara la expresión anterior con la definición del operador de evolución temporal, ecuación (1.11), se observa que, para hamiltonianos independientes del tiempo, el operador de

evolución tiene la forma siguiente:

$$U(t, t_0) = e^{iH(t-t_0)/\hbar} \quad (1.16)$$

c) finalmente, si se sustituye la definición del operador de evolución en la ecuación de Schrödinger (1.3), se puede ver que este operador satisface la ecuación de operadores:

$$i\hbar \frac{\partial U(t, t_0)}{\partial t} = H(t) U(t, t_0) \quad (1.17)$$

En la siguiente sección, en donde se presenta el método de Bebb y Gold se utilizará esta última expresión para obtener una equivalente en términos de integrales, y se usará esta representación integral para hacer un desarrollo por iteraciones (sección 1.3.1).

6.2 El esquema de interacción:

Cuando se plantea el problema de encontrar las funciones de estado de un sistema con un hamiltoniano de la forma:

$$H = H_0 + V \quad (1.18)$$

(donde H_0 es una parte no dependiente del tiempo y V es una perturbación que sí depende del tiempo) resulta conveniente hacer algunas transformaciones sobre los operadores y sobre las funciones de onda del sistema, pues esto se refleja en simplificaciones a la hora de evaluar el desarrollo en el tiempo de observables. Lo de hacer estas transformaciones es que el significado físico de las expresiones que se obtienen no es distinto de lo que se obtiene en caso de no hacerlas.

En este contexto, el formalismo de Interacción, que es un caso particular del enfoque de operadores de Heisenberg, está basado en

la transformación de las funciones de onda y de los operadores asociados a observables físicas de la siguiente manera:

$$|\psi^{\sim}(t)\rangle = e^{iH_0(t-t_0)/\hbar} |\psi(t)\rangle \quad (1.19a)$$

$$A^{\sim}(t) = e^{iH_0(t-t_0)/\hbar} A e^{-iH_0(t-t_0)/\hbar} \quad (1.19b)$$

Donde A es una observable del sistema, H_0 es el hamiltoniano no dependiente del tiempo y $|\psi(t)\rangle$ es la función de estado que satisface (1.3). Es sencillo probar (capítulo 2 ref. [1.9]), a partir de estas definiciones que el valor esperado de las observables transformadas (A^{\sim}) es igual que el correspondiente a los operadores no transformados que se usan en el esquema de Schrödinger (A), es decir:

$$\langle A^{\sim} \rangle = \langle A \rangle \quad (1.19c)$$

Dado que los valores esperados de un operador son los que contienen la información física del sistema, pues corresponden a las variables medibles experimentalmente, entonces el uso del esquema de interacción es totalmente equivalente al de Schrödinger.

6.3 Forma explícita de algunos operadores.

A continuación se presenta la forma de algunos operadores usados de manera frecuente en la teoría de interacciones de átomos con campo electromagnético:

El hamiltoniano para el electrón de un átomo que interactúa con un campo se puede escribir de la siguiente manera [1.19] :

$$H = H_0 + H_r + H_I \quad (1.20)$$

Donde H_0 es el hamiltoniano de un electrón ligado al sistema atómico, H_r el del campo y H_I el que corresponde a la interacción entre el campo y el átomo. La forma de estos operadores es la siguiente :

$$H_0 = \frac{p^2}{2m} + V(r) \quad (1.20a)$$

(con m la masa del electrón , p^2 el cuadrado del operador de momentum y $V(r)$ el potencial de ligadura del electrón).

H_r , en el formalismo de la segunda cuantización se puede expresar de la siguiente manera:

$$H_r = \sum_k a_k^\dagger a_k \omega_k \quad (1.20b)$$

En donde a^\dagger es el operador de creación, que surge naturalmente de la teoría del oscilador armónico cuántico, y a es el operador de aniquilación. En la referencia [1.8] capítulo IV se presenta una deducción cuidadosa y argumentada de la forma en que se obtiene esta parte del hamiltoniano. A grandes rasgos, el proceso de pasar de un hamiltoniano clásico a uno cuantizado se lleva a cabo de la siguiente manera : si se expresa un campo electromagnético cualquiera en términos de modos normales del campo en una cavidad, las ecuaciones dinámicas para los potenciales vectoriales de los modos de oscilación son semejantes a las del oscilador armónico cuántico, por lo que el uso de los operadores de ascenso y descenso surge de manera natural en la teoría de campo cuantizado como se introducen en la teoría del oscilador cuántico.

Existen enfoques alternativos para cuantizar el hamiltoniano

del campo. En la referencia [1.10] se presenta uno, basado en la transformación a coordenadas normales en el espacio de Fourier de los potenciales vectoriales del campo, se muestra de igual manera que la ecuación dinámica que obedecen es , nuevamente la del oscilador armónico. Todos los conceptos que aquí se presentan son desarrollados de manera mas amplia en [1.11].

Finalmente, el hamiltoniano de interacción H_I , que es el que liga al campo y al sistema atómico está expresado por:

$$H_I = -eE(\mathcal{R}, t) \cdot \mathcal{R} \quad (1.20c)$$

donde e es la carga del electrón, E es el operador de campo eléctrico y \mathcal{R} es la posición del electrón respecto al núcleo del átomo.

7. Algunos modelos interacciones de intensidad alta.

Ya que se han presentado algunos conceptos básicos y ahora se pueden usar con libertad en la descripción de los modelos que se han empleado para estudiar las propiedades de los fenómenos multifotónicos , algunos de los cuales se muestran a continuación.

7.1 El Método de Bebb y Gold [1.1]

El objetivo de presentar algunos modelos teóricos en esta sección consiste en obtener una idea de las características que distinguen los procesos multifotónicos de otros procesos . El resultado más significativo que se obtiene de esta teoría es que, para frecuencias que son divisores enteros de alguna frecuencia de transición del sistema, la probabilidad de transición crece notablemente. El método se basa en el desarrollo en series a distintos órdenes del operador de evolución temporal que se presentó en la sección 1.2.1. Partiendo de una expresión integral

de la ecuación de Schrödinger, y por medio de iteraciones hechas sobre esta expresión se obtienen los desarrollos a orden N del operador. La suposición mas importante de esta aproximación es el afirmar que la razón de transición por un número N de fotones se puede evaluar a partir de los elementos de matriz de el término n -ésimo del desarrollo del operador de evolución $U(t, t_0)$.

Una vez que se ha postulado lo anterior, se puede proceder a la descripción de las ideas generales del método de Bebb y Gold con la aclaración de que, aunque la notación no lo indique explícitamente, los operadores están transformados al esquema de interacción que se presentó en la sección pasada.

Si se considera la forma integral equivalente a la expresión (1.17) para la evolución del operador $U(t, t_0)$ se tiene:

$$U(t, t_0) = 1 - i\hbar^{-1} \int_{t_0}^t H'(t') U(t', t_0) dt' \quad (1.21)$$

La ventaja de usar la notación integral de la ecuación (1.17) consiste en que la expresión (1.21) puede iterarse dentro de si misma, dando lugar a desarrollos en series de el operador $U(t, t_0)$ a distintos órdenes y, según el número de órdenes que se consideren $U(t, t_0)$ será obtenida con mayor precisión.

De la definición del operador de evolución se puede ver de manera directa que $U(t_0, t_0) = 1$. si se usa esta forma de U (que podemos denominar " de orden cero") en 1.21, se tendrá entonces, a orden 1, la siguiente expresión:

$$U(t, t_0) = 1 - i\hbar^{-1} \int_{t_0}^t H(t_1) dt_1 \quad (1.22a)$$

si se vuelve a iterar la solución (1.22) en (1.21) se obtiene la expresión de U a orden 2 :

$$U(t, t_0) \approx 1 + (i\hbar)^{-1} \int_{t_0}^t H(t_1) dt_1 + (i\hbar)^{-2} \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 H(t_1) H(t_2)$$

(1.22b)

y así sucesivamente, de tal suerte que el operador de evolución se puede expresar de manera general, en la forma siguiente:

$$U(t, t_0) = U^{(0)}(t, t_0) + U^{(1)}(t, t_0) + U^{(2)}(t, t_0) + \dots$$

(1.22c)

Entonces, partiendo de la premisa en la que se basa el método, para obtener las razones de transición entre dos estados para procesos multifotónicos de orden N, se tienen que evaluar matrices del tipo:

$$P_{i' i}^{(N)} = \langle i' | U_T^{(N)}(t, t_0) | i \rangle$$

(1.22c)

Dado que las expresiones para obtener los elementos del tipo de (1.22c) se vuelven muy largas y, en ocasiones complicadas, se ha evitado en lo posible escribirlas de manera explícita, por lo que se refiere al lector interesado al artículo original [1.1]. Después de un desarrollo relativamente largo, y de algunas aproximaciones se obtiene finalmente que la probabilidad de transición toma la forma siguiente:

$$P_{i' i}^N = \frac{m}{\hbar(2\pi)^2} (2\pi\alpha F\omega)^N |K_{i' i}^N| k$$

(1.23)

Donde F es el flujo de luz (intensidad del haz), k el número de onda, m la masa del electrón, α la constante de estructura fina

$(e^2/\hbar c)$ y K_{ij} , un elemento de matriz, dado por:

$$K_{ij}^N = \frac{\langle i | Z^N | j \rangle}{\prod_n (\omega' - n\omega + \frac{1}{2} i\gamma)} \quad (1.23a)$$

donde ω' es una frecuencia promedio que representa estados de transición en el sistema, ω es la frecuencia del campo perturbativo, n se refiere al número de fotones que se pueden absorber para alcanzar un estado excitado y el término que involucra a γ se añade por razones que se explican adelante.

En el artículo original de Bebb y Gold [1.1] se describe con más detalle la forma de los elementos de matriz del tipo (1.22c) y las suposiciones que se usan para simplificarlos. Se hacen cálculos específicos a partir de las expresiones obtenidas para probabilidades de transición en átomos hidrogenoides y se discute la generalización de los cálculos obtenidos a sistemas atómicos más complicados, entre ellos, los gases nobles. Entre las suposiciones que se hacen en la obtención de los elementos de matriz, se supone que los campos que se aplican tienen frecuencias con valores cercanos a múltiplos enteros de algunos niveles del átomo. Este enfoque, denominado "cuasi resonante", se usa frecuentemente en la teoría de interacciones debido a que simplifica cálculos que, de otra manera serían muy complicados. En principio la técnica de Bebb y Gold no considera los casos de resonancia "exacta" lo cual es una limitación sería pues para frecuencias de resonancia las expresiones para la probabilidad se indeterminan. Para evitar lo anterior, Bebb et Al. introducen de manera fenomenológica, y siguiendo la aproximación de Weisskopf y Wigner [1.12], un término de amortiguamiento $i\gamma/2$, relacionado con el decaimiento del nivel excitado j , de esta manera un tanto artificial se evita que los denominadores de la matriz K_{ij} se hagan cero. Con lo anterior las expresiones obtenidas proporcionan una idea aceptable del comportamiento de la probabilidad de transición en función de la

frecuencia como se muestra en el parrafo que sigue.

Para concluir esta sección se muestra en la gráfica 1.1 el comportamiento típico de la probabilidad de transición en función de la frecuencia que se obtiene a partir de los cálculos de Bebb y Gold. El comportamiento que aquí se muestra es el que caracteriza a los procesos multifotónicos resonantes. Las frecuencias para las que el denominador de la expresión (1.23a) son un mínimo (y por lo tanto la probabilidad es máxima) corresponden a divisores enteros (con divisor N) de niveles de energía en el átomo. Los niveles de energía del sistema atómico se etiquetan como E_i , con $i = 1, 2 \dots$ etc.

Es importante hacer notar aquí que del comportamiento anterior se sugiere una técnica muy directa para identificar estados excitados: Si se toma un registro de la tasa de absorción o de ionización de un sistema atómico en función de la frecuencia del campo electromagnético que lo perturba, entonces, identificando las

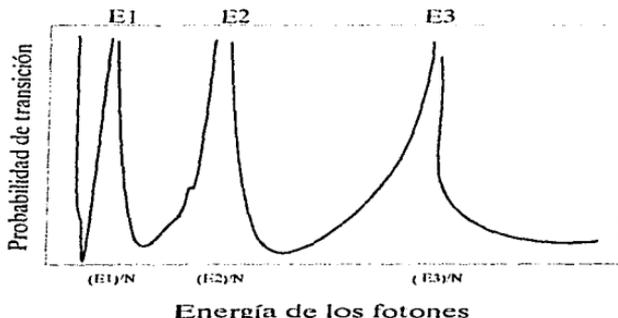


Figura 1.1 Variación de la probabilidad de absorción de N fotones en función de la frecuencia. Los picos corresponden a distintos niveles del sistema, etiquetados por E_i

frecuencias en las cuales la señal de ionización crece, se identifica con eso algún nivel excitado del átomo. La idea anterior es justamente la base de la técnica experimental que se usa en el presente trabajo, y que se discutirá con mayor amplitud en el capítulo siguiente, en la parte instrumental. Es evidente que la técnica depende fuertemente de la capacidad que se tenga para poder variar con precisión la longitud de onda de la luz que proporciona la fuente radiante, y es por lo mismo que el oscilador paramétrico que se usa es de gran importancia en el arreglo experimental.

7.2 Otros Métodos

Adicionalmente al método de Bebb y Gold, que se presenta en la sección anterior y que permite conocer el comportamiento general que siguen los procesos multifotónicos, existen otros métodos y enfoques. A continuación se describen de manera muy general algunos de ellos y se anexa la bibliografía en que se puede profundizar sobre ellos.

a. El método de Resolventes

El método llamado de resolventes fue inicialmente propuesto por Goldberg [1.13], y hace uso de en operadores de Green y series de éstos. El método se basa en una transformación del operador de evolución $U(t, t_0)$ a un nuevo operador $G(z)$ donde z es una variable compleja. El objeto de esta transformación consiste en simplificar la evaluación de los elementos de matriz, pues para G las matrices no dependen del tiempo. Al igual que en el método de Bebb, se hace un desarrollo en series de los operadores y el orden N de la serie está asociado a un proceso de n fotones. Se elige el esquema de interacción para representar los operadores y los resultados para los elementos de matriz son muy parecidos a los que

se obtienen de las técnicas integrales de Bebb y Gold. El aspecto más importante que se presenta en esta técnica es que, por medio de la introducción de dos operadores de proyección, se puede atacar de una manera más sistemática el problema de resonancias exactas que Bebb solo resuelve de manera heurística. En la referencia [1.14] se discute con más amplitud el uso de este método. La aplicación particular de este método para sistemas atómicos específicos se encuentra en varias referencias, entre las que se puede citar [1.15] y [1.16] entre otras.

b. Modelo Vectorial de Bloch Feynman

Históricamente el problema de la resonancia magnética electrónica, en el que se considera la transición entre dos estados en un sistema magnético con espín $1/2$ influido por un campo magnético constante y otro perpendicular rotante, fue de los primeros problemas de interacciones que encontró una explicación teórica satisfactoria. Sin embargo el interés por este tipo de fenómenos va más allá de la resonancia magnética misma y de su valor histórico, pues se puede hacer una analogía muy cercana entre este tipo de sistemas y un sistema atómico de dos niveles (complemento C_{IV}, referencia [1.4]). Este enfoque fue usado por Feynman y Bloch para resolver problemas en que un sistema atómico se puede modelar adecuadamente como si sólo contara con 2 niveles, y se conoce, por esta razón, como el modelo "Vectorial", o de Bloch Feynman. Una explicación cuidadosa de este método se puede encontrar en el capítulo 2 de la referencia [1.17].

A grandes rasgos, la base del método es en usar una aproximación de la ecuación de Liouville (la llamada aproximación de onda rotante) para simplificar las ecuaciones dinámicas de los elementos de matriz de operador de densidad del sistema; se define a partir de lo anterior un conjunto de vectores cuyas componentes están relacionadas con estos elementos de matriz y se estudia el comportamiento de estos vectores en términos de un pseudocampo. La

validez de el esquema de Bloch Feynman se puede extender a procesos multifotónicos con la elección cuidadosa de operadores adecuados .Una discusión amplia de lo anterior se encuentra en [1.17] y en [1.18].

Referencias:

- [1.1] Bebb H.B ,Gold A.,*Multiphoton Ionization of Hydrogen and Rare-gas Atoms*. Phys Rev. 143, 1. (1966)
- [1.2] Meyerand R.G,Haugth A.F., Phys. Rev. Letters 13,7 (1964)
- [1.3] Morellec J., Normand D., and petite G., *Nonresonant Multiphoton Ionization of Atoms*. Advances in Molecular and Optical Physics, Vol. 18, 97-164 (1966)
- [1.4] Cohen T., Bernard D., Franck L., *Quantum Mechanics Volume Two*,Wiley Interscience, Second edition,(1977), Capitulo XIII.
- [1.5] Svelto O. David C.H., *Principles of Lasers*, Second Edition, Plenum Press, (1982), Capítulo 2, sección 2.2
- [1.6] Philip M. J.,Charles E.O., *Molecular Multiphoton Spectroscopy with Ionization Detection*.Ann. Rev. Phys. Chem. (1981). 32:139-157
- [1.7] Muller H.G., Tip A., Van der Wiel M.J. *Pondemorative Force and AC Stark Shift in Multiphoton Ioization*, J. Phys. B, at. Mol. Phys. Letter, 16 (1983) L679-L685
- [1.8] Amusia M.Y. *Atomic Photoeffect*. Plenum Press, New York, (1990).

- [1.9] Weissbluth M. *Photon-Atom Interactions*. Academic Press Inc. (London), (1989), sección 2.3
- [1.10] Tannoudji C. Dupont-Roc J. Grynberg G. *Photons & Atoms, Introduction to Quantum Electrodynamics*, John Wiley & Sons, New York, (1989)
- [1.11] Heitler W. *The Quantum Theory of Radiation*. Oxford Press, Oxford, (1954)
- [1.12] Weisskopf V.F., Wigner E. P., *Z. Physik* 63, 54 (1930)
- [1.13] Goldberger, M.L., Watson K.H. *Collision Theory*, Wiley, New York, (1964).
- [1.14] Lambropoulos P. *Topics on Multiphoton Processes in Atoms*. Advances in Molecular and Optic Physics, Vol 12, 87-159 (1976)
- [1.15] Gontier Y., Armstrong L., *Theory of Resonant Ionization: Application to Cesium Atom*. *Phys. Rev. A.* 19, 264 (1975)
- [1.16] Beers B.L., Armstrong L. Jr, *Phys. Rev., A.* 12, 2447 (1975)
- [1.17] Levenson M. D., Kano S. S., *Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy*, Academic Press INC. (1988)
- [1.18] Friedman H., Wilson-Gordon A.D., *Opt. Commun.* 24, 5 (1978); 26, 193 (1978)
- [1.19] Power E.A., Zienau, *Phil. Trans. Roy. Soc. (London)* A251, 427 (1959).

CAPÍTULO II

ASPECTO EXPERIMENTAL

1. Introducción

En el capítulo anterior se revisaron algunos conceptos básicos y características que distinguen al proceso de ionización multifotónica con respecto a procesos con un fotón, así como algunas aproximaciones teóricas que se han propuesto para describir dicho fenómeno. Un problema diferente del conceptual, e igual de elaborado, es el de idear y construir un arreglo experimental que haga posible observar el proceso multifotónico .

El contenido de este capítulo está enfocado a proporcionar una descripción general del arreglo que fue diseñado y construido a fin de identificar estados excitados en muestras gaseosas por fenómeno de ionización multifotónica , y la dependencia en intensidad y frecuencia de este proceso. Para este objeto se describe de manera general el espectrómetro y el sistema que se usa para detectar los iones de la especie bajo estudio (xenón en nuestro caso) , así como en la técnica empleada para identificarlos, basada en la medida del tiempo de vuelo de estos iones en una región libre. Se presenta, asimismo, el arreglo de sincronía usado para coordinar los distintos elementos del aparato y se hace una descripción general de cada uno de los elementos que constituyen el espectrómetro.

Un elemento muy notable del arreglo lo constituye el sistema YAG:MOPO y que consiste en un laser Nd:YAG de alta potencia (1.2x10⁶W) que bombea a un oscilador paramétrico (MOPO), cuyo principio de operación se describe de manera general en este

capítulo, que permite variar la longitud de onda de la radiación que se emplea para excitar las muestras con precisión y facilidad. Por la importancia instrumental del oscilador y por lo novedoso del principio en que basa la conversión en frecuencia, se anexa un apéndice en donde se discuten algunos aspectos de la física inherente a la conversión paramétrica.

2. TÉCNICA.

En términos muy generales el experimento consiste en la interacción entre un haz de luz proporcionado por la fuente sintonizable, con un haz de los átomos que se desean estudiar y proporcionados por una fuente pulsada de haces moleculares con una rapidez de varios Mach. Después de la interacción con la luz se extraen los iones producidos en la región de interacción por medio de un sistema de placas paralelas entre las que se aplica una diferencia de potencial y se hacen "volar" en una región con campo eléctrico cero y en condiciones de alto vacío para evitar que se dispersen o cambien su estado de carga por colisiones con el gas residual durante su viaje. Dado que la frecuencia que se usa para la luz que interactúa con el campo es en todos los casos menor que el potencial de ionización o incluso que cualquier nivel de energía del átomo, entonces, en caso de haber ionización, ésta puede ser causada por absorción multifotónica. Posteriormente se detecta la llegada de los iones al final de la región libre usando un arreglo de placas constituidas por gran conjunto de dinodos continuos micrométricos (placas microcanal) y, finalmente, se mide el tiempo que les tomó a los iones volar en la región libre por medio de un sistema ultrarrápido de adquisición llamado escalador multicanal (5 ns de precisión) que, además de contabilizar el arribo de iones en función del tiempo, permite visualizar el fenómeno en forma de un espectro de tiempo de arribo en el monitor de una P.C. En base al

tiempo de vuelo de los iones en la región libre se puede medir su relación carga-masa , como se explicará mas adelante.

Es posible identificar la energía del estado excitado a partir del cual ocurrió la ionización con un registro de la corriente de iones producidos en función de la frecuencia empleada en la fuente, es decir, se compara la frecuencia de los fotones que se obtienen del oscilador paramétrico con divisores enteros de las frecuencias de transición entre el estado base y los distintos estados excitados de la muestra : cuando la frecuencia de los fotones es igual a un divisor entero de la energía entre dos niveles del átomo o, equivalentemente, cuando la energía de un número entero de fotones iguala la energía entre el estado base y un nivel excitado, se obtiene un máximo en la señal iónica y el número de iones producidos crece notablemente. Por otro lado, si la condición de resonancia no se satisface entonces no hay iones , o los hay en un número muy reducido . Con esas condiciones se puede saber con claridad si la frecuencia que se emplea para excitar al sistema esta en resonancia con este o no con algun nivel de energía del átomo.

La figura 2.1 muestra una representación esquemática del arreglo experimental usado. En ella se presentan las partes más importantes de el aparato que se mencionaron al principio: El sistema YAG-MOPO , que proporciona los fotones para la interacción y que permite variar la longitud de onda de éstos; el sistema óptico, con el cual se enfoca y manipula la luz proveniente del MOPO; la región de ionización , que es el lugar donde la fuente de haces supersónicos inyecta el gas-muestra y donde ocurre la interacción de los átomos con el láser; el espectrómetro de tiempo de vuelo, que permite identificar la relación carga-masa del átomo bajo estudio y , por último, los sistemas de detección y adquisición , que funcionan por medio de una interfaz entre nuestro experimento y una P.C., y que son los encargados de capturar y almacenar los espectros de tiempo de vuelo para su estudio ulterior.

En la figura se representa con un círculo la fuente supersónica de haces moleculares, que en el arreglo físico real esta localizada en la parte superior del tubo de vuelo, y perpendicular a él .

Algunos detalles de los elementos que conforman el arreglo experimental se pueden encontrar en [2.1]. por lo que la descripción que de los elementos del aparato que se hace aquí no es tan extensa.

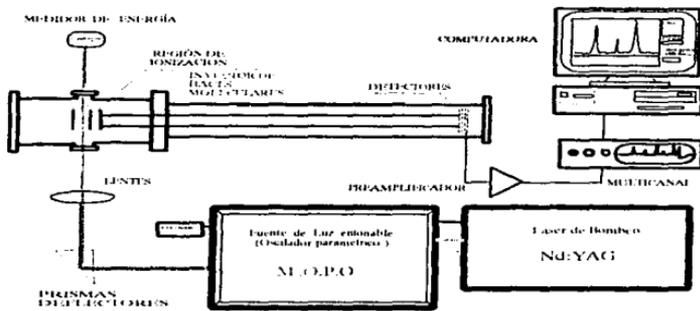


Figura 2.1 Esquema general del arreglo experimental construido para observar IMR

3. Elementos del espectrómetro.

En las secciones siguientes se hace una descripción general de los elementos más importantes del espectrómetro, sus características y sus modos de operación, así como de las referencias bibliográficas pertinentes en los casos en que sean necesarias.

3.1 La fuente de haces

La identificación de niveles de energía por absorción multifotónica se puede simplificar mucho si se puede asegurar que los átomos están en el mismo estado antes de interactuar con el campo, y que tal estado común sea de preferencia el estado base. Lo anterior es importante debido a que la identificación de el estado excitado a partir del cual ocurre la ionización resonante es posible siempre y cuando el estado inicial del electrón que va a ser promovido al continuo esté definido. Lo anterior plantea el problema de lograr esta condición de manera experimental. Adicionalmente, existe un problema en la precisión con que se puede medir el tiempo de vuelo de los iones, si en la muestra de gas se tiene una distribución de velocidades ancha. El origen de este problema en la precisión reside en el hecho de que, incluso para partículas idénticas, con la misma razón carga-masa y creadas en el mismo lugar, éstas tendrán tiempos de vuelo distintos si sus velocidades iniciales son distintas [2.2]. Por todo lo anterior surge un conjunto de preguntas válidas: ¿es posible experimentalmente obtener un gas de suficiente densidad y cuyos átomos se encuentren mayoritariamente en el estado base?, ¿cómo se puede lograr que su distribución de velocidades sea lo más angosta posible para fines de precisión?, ¿cómo se puede tener suficiente densidad en el chorro de gas sin saturar al sistema de vacío?.

La respuesta a las preguntas anteriores se encuentra en una técnica propuesta a principios de los años 50's por Kantowitz y Grey [2.3],[2.4] desarrollada en años posteriores de manera experimental: Haciendo uso de una válvula electromecánica de alta respuesta se deja que el gas muestra, que inicialmente se encuentra en un depósito conectado a la válvula a presión y temperatura constantes, se introduzca y expanda adiabáticamente dentro de la cámara de vacío del espectrómetro hasta alcanzar un colimador, llamado skimmer, que permite seleccionar y direccionar

la zona de mayor densidad del gas expandido hacia la región donde la interacción con el laser toma lugar [2.1] [2.3],[2.5],[2.6]. El skimmer es un colimador cónico muy frágil, por lo que es necesario asegurar que la presión del gas del recipiente que se conecta a la válvula no exceda 1 atm de presión. La válvula opera de manera pulsada, abriéndose durante un tiempo que se puede controlar a voluntad, del orden de 600 μ s y cerrándose después de este tiempo al ritmo de repetición del láser (10 Hz). En la expansión adiabática, el movimiento aleatorio de las partículas del gas del contenedor toman una dirección vertical definida con componentes transversales despreciables. Lo anterior se refleja en que la distribución de velocidades sea más angosta, con el consiguiente beneficio para la precisión en la medida del tiempo de vuelo. Por las múltiples colisiones que los átomos sufren en el proceso de expansión los estados internos de energía se relajan y los átomos salen mayoritariamente en el estado base. El haz gaseoso resultante es muy intenso, y se colima con el skimmer. Dado que la válvula trabaja de manera pulsada, y que los pulsos son muy cortos, el sistema de vacío no se ve comprometido (ver siguiente sección).

3.2 El sistema de vacío.

La técnica de identificación de iones por tiempo de vuelo depende críticamente de que efectivamente la región en la que se dejan volar los iones sea una región libre. Para asegurar esta condición se cuenta con un sistema de ultraalto vacío que permite alcanzar presiones base de 10^{-10} Torr, cuando la fuente no está operando, y del orden de 10^{-7} con la fuente de haces encendida. Lo anterior se logra usando un sistema de dos bombas de alto vacío turbomoleculares VARIAN con una velocidad media de bombeo de 450 l/s, que funcionan por medio de turbinas con rotores hechos de aleaciones especiales de aluminio y que giran a razón de 30KHz; soportadas por una bomba mecánica de diafragma ALCATEL con una pequeña bomba turbomolecular integrada. La cámara de vacío en forma de "t" alargada esta construida en su totalidad con acero

inoxidable no magnético con juntas metal-metal en las partes no fijas y tiene un volumen aproximado de 50 l y fue desgasificada a altas temperaturas(300°C) antes de las pruebas. En la referencia [2.1] se puede encontrar una descripción más amplia del sistema. La presión en el sistema se mide de la manera convencional, usando medidores termoelectricos del tipo Pirani en la región de 10^{-3} Torr y medidores del tipo ion-gauge, que trabajan en base a la tasa de ionización del gas en la cámara y que permiten medir la presión en la región de alto y de ultraalto vacío (10^{-4} a 10^{-10} Torr) [2.7].

En la figura 2.2 se presenta un esquema del espectrómetro en la que se muestra el arreglo del vacío. Se presentan también algunos elementos que serán descritos posteriormente, como los detectores y la electrónica asociada a ellos.

3.3 Relación carga-masa y tiempo de vuelo.

Los átomos o moléculas que salen del sistema de haces pulsado interactúan en la región de placas paralelas -representada en la parte izquierda de la figura (2.2)- con la luz proveniente del sistema YAG-MOPO. Si las condiciones de intensidad y de frecuencia de la luz son las adecuadas(intensidad mínima de 10^{16} W/cm²), entonces el átomo saldrá de la interacción convertido en ión, es decir, tendrá un estado definido de carga (q) positivo. En estas condiciones, y dado que las placas están polarizadas a un potencial (V) fijo, los iones positivos saldrán acelerados hacia la región de vuelo libre. Si todos los iones se forman en la misma posición (d) entonces (ver fig. 2.3), para un ion con carga (q) y masa (m) la energía cinética adquirida hasta la entrada de la región libre es:

$$E_c = qV_{ex}$$

(2.6)

Donde V_{eff} es el voltaje efectivo definido por:

$$V_{eff} = \left[\frac{d}{S_1} (V_1 - V_0) \cdot (V_2 - V_1) \right] \quad (2.7)$$

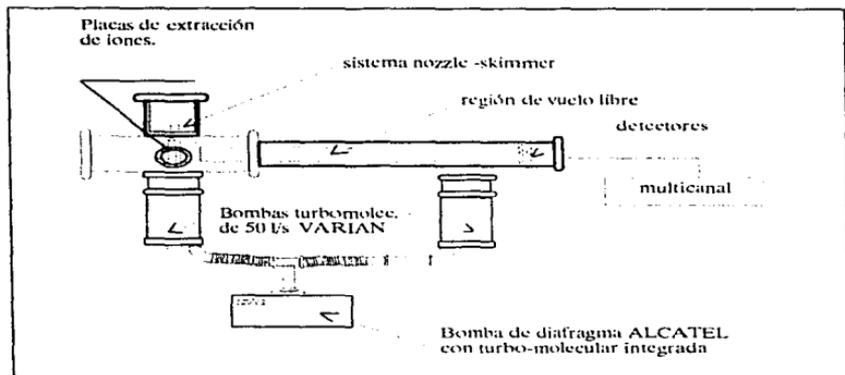


Figura 2.2 esquema del espectrómetro de tiempo de vuelo.

En términos de lo anterior, el tiempo que le toma a la partícula para recorrer la distancia D en la región libre esta dada por:

$$T_v = D \sqrt{\frac{m}{2qV_{eff}}} \quad (2.8)$$

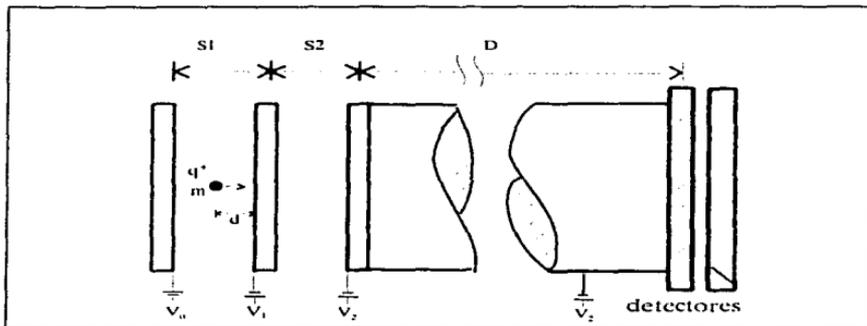


Fig. 2.3 Arreglo de placas paralelas

Para el arreglo experimental que se diseñó, los valores conocidos en (2.7) y (2.8) son:

$S1 = 9 \text{ mm.}$	$V0 = 100V$
$S2 = 5 \text{ mm.}$	$V1 = -100 \text{ V}$
$D = 1 \text{ m.}$	$V2 = -2700 \text{ V.}$

El valor de V_0 y V_1 se pueden modificar por medio de una fuente de voltaje variable según se necesite optimizar la señal de iones. El potencial de -2700 , además de servir para acelerar las partículas formadas, tiene el propósito de polarizar el sistema de detección.

La única limitante que se tiene para determinar los tiempos de vuelo, la establece el sistema que cuenta el tiempo, y que es un sistema llamado escalador multicanal, cuyo funcionamiento se

describirá en secciones posteriores. Baste aquí señalar que la precisión en tiempo que se puede alcanzar con dicho instrumento es del orden de 5 ns , por lo que, para los fines de medida de tiempo

de vuelo que se requería en este experimento, el aparato aquí presentado no tiene ninguna limitante para determinar el tiempo de vuelo de cualquier partícula. Si se puede medir el tiempo de vuelo T que a la partícula le toma viajar de la región donde se forma a la región donde se detecta, se estará en posibilidad, como se dijo en la introducción de este capítulo, de distinguir entre dos especies con distinta relación carga entre masa. La precisión con que se puede medir este cociente (para q constante) en términos del cociente $m/\Delta m$ es del orden de 1800, es decir, que se puede distinguir con precisión de 1 u.m.a. en valores cercanos a las 1800 u.m.a. para especies con el mismo estado de carga. Para propósitos de identificación, se hizo uso de un programa comercial que simula trayectorias de partículas cargadas en campos eléctricos, conocido como SIMION y que permite calcular, aproximadamente, el tiempo de arribo de una partícula con cociente q/m en un arreglo igual al del aparato construido. El software resuelve la ecuación de Laplace basado en el método del promedio, y utiliza las soluciones que obtiene para resolver la trayectoria dinámica del ion.

3.4 Sistema de detección: placas microcanal y preamplificador

Una vez que los iones terminan su recorrido en la región de vuelo libre son detectados por un arreglo de placas microcanales, que consiste en un conjunto de 10^7 pequeños microcanales cubiertos con una película semiconductora con función de trabajo baja. Cuando una partícula se impacta contra las paredes de uno de estos canales micrométricos, se producen electrones por emisión secundaria de las paredes de éste y, en virtud de un potencial que se aplica entre las placas, como se muestra en la figura 2.4, los electrones son acelerados hacia el interior del microcanal, colisionando nuevamente con las paredes y desprendiendo a su vez más electrones, de tal manera que se produce una avalancha en el interior del microcanal. Este proceso se repite en una segunda

etapa (Placa 2) y la corriente final que se obtiene después del proceso anterior, se amplifica, por medio de un preamplificador de respuesta ultrarrápida (1ns). La eficiencia estimada del detector es de 10^6 electrones producidos por cada partícula que incide en él. La siguiente etapa del proceso de detección consiste en medir el tiempo de vuelo de las partículas y esta medida está a cargo del sistema escalador multicanal, cuyo funcionamiento se describe a continuación.

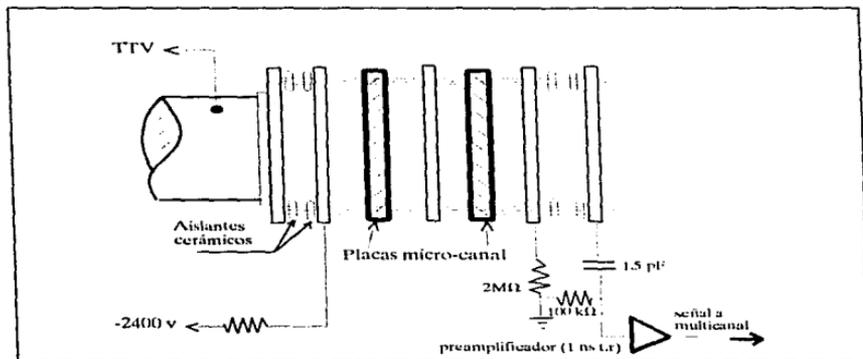


Figura 2.4 Arreglo de placas microcanales para detección de iones

3.5 El sistema escalador multicanal.

Se ha dicho que el tiempo típico de arribo de los iones al final de la región de campo libre es del orden de microsegundos. Para determinar con precisión este tiempo el espectrómetro está dotado de un escalador multicanal de EG&G ORTEC modelo T914.

El multicanal es un dispositivo que consta un conjunto celdas

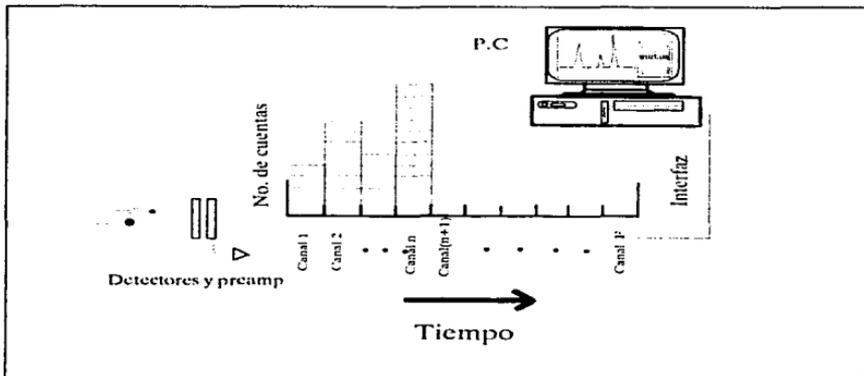


Figura 2.5 Esquema de operación del escalador multicanal.

de memoria (16000 en nuestro caso) que registran la tasa de eventos, en este caso el arribo de los iones a la región de detección) en función del tiempo. Cuando el laser envía su pulso de luz hacia la muestra gaseosa, envía simultáneamente un pulso analógico hacia el multicanal, el cual empieza inmediatamente a contar los eventos en su primer celda de memoria. Después de un tiempo que se puede cambiar a voluntad, llamado tiempo de residencia y que tiene un límite inferior de 5 ns, el multicanal avanza hacia su siguiente celda de memoria, acumula cuentas durante el tiempo de residencia preestablecido y así sucesivamente, hasta llegar al canal elegido como el final en términos del tiempo de vuelo estimado del proceso (figura 2.5).

Un versátil sistema de discriminación incluido en el software

del multicanal permite eliminar señal que no provenga de las placas microcanal, a fin de evitar cuentas espurias. Los datos así obtenidos son presentados de manera gráfica como un espectro de cuentas de iones en función del tiempo, por medio de una interfaz digital entre el modulo del multicanal y una computadora personal. El control mismo del multicanal, la elección de valores de tiempo de residencia y el número de adquisiciones se controlan desde la computadora por medio de un programa que trabaja en ambiente Windows. El proceso de adquisición del espectro en tiempo que acabamos de describir se repite 10 veces por segundo, pues ese es el ritmo de repetición del laser Nd:YAG y cada vez, el multicanal suma las cuentas del disparo nuevo del laser a las del anterior, de tal manera que la dispersión estadística y las fluctuaciones en cuentas se reducen según a medida que aumenta el número de eventos registrados. El número de veces que este proceso de acumulación ocurre se puede modificar también, como ya se mencionó anteriormente y va desde un solo ciclo hasta 99 mil.

3.6 SINCRONÍA DE LOS ELEMENTOS DEL ESPECTRÓMETRO

Una vez que se han descrito los distintos elementos del sistema experimental conviene ahora puntualizar que la sincronía en tiempo entre sus distintos elementos es fundamental puesto que, para poder observar el fenómeno de IMR y detectar los iones producidos, es necesario que el pulso del láser coincida espacialmente con el haz gaseoso y esto implica sincronizar procesos que duran tiempos muy cortos: el pulso del láser que se usa para inducir la IMR tiene una duración en el tiempo de 8×10^{-7} segundos, la fuente de haces atómicos trabaja de manera pulsada, produciendo "trenes" atómicos de 600 μ s en tiempo que viajan a una velocidad aproximada de 600 m/s en una región de apenas 10 cms, lo

que implica un tiempo de viaje desde la salida del skimmer a la zona donde ocurre la interacción de $100 \mu\text{s}$ y, finalmente, los iones producidos tienen tiempos de vuelo del orden de $10 \mu\text{s}$ en la región de vuelo libre. De lo anterior resulta claro que si se quiere hacer interactuar al laser con los átomos provenientes de la fuente y medir de manera precisa el tiempo que tardan en viajar los iones formados en esta interacción desde el lugar en que fueron formados a el lugar en que se detectan, entonces es necesario establecer un arreglo de sincronía entre las distintas partes del aparato, con precisión al menos del orden de millonésimas de segundo, para tener la confianza de que la interacción se va a realizar, y de que la medida del tiempo de vuelo de los iones va a ser confiable. La figura 2.6 representa de manera esquemática la relación de

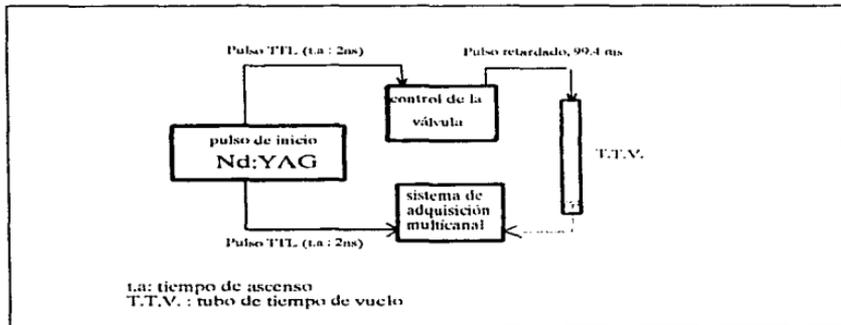


Fig 2.6 Esquema de sincronía entre el YAG, la válvula de haces y el sistema de adquisición

sincronía entre el tiempo de inicio del pulso del laser, el tiempo en que inicia el pulso del gas y el correspondiente a la adquisición de los datos obtenidos, junto con los retardos correspondientes.

El inicio del proceso lo determina el laser pues en cada pulso de luz que envía, simultáneamente manda un pulso eléctrico TTL a la entrada analógica de la válvula supersónica y al sistema multicanal. El control de la válvula está dotado de un sistema de retardo en tiempo que permite abrir la válvula en el momento preciso, de tal suerte que el pulso del laser coincida con el tren de gas. Conviene comentar aquí que cuando la válvula se abre el controlador produce a su vez un pulso TTL, el cual es muy útil para poder relizar la sincronía entre el YAG y la válvula . Es necesario aclarar que el pulso de gas que se activa con el disparo "n" interactúa con el pulso del laser "n+1" y así sucesivamente . El retardo efectivo entre el pulso del laser y la apertura de la válvula es de 99.4 milisegundos, y se estimó haciendo uso de un osciloscopio Tektronix de 500 MHz[2.1]. El sistema de adquisición multicanal se activa sin retardo, pues la interacción inicia cuando el laser se dispara, es decir, se desprecia el tiempo que tarda la luz del laser en recorrer la trayectoria que lo lleva a interactuar con el haz atómico, y que es del orden de 10 ns. Asimismo, el tiempo de ascenso de los pulsos TTL es del orden de 2 ns y el retardo producido por su propagación a travez de los cables (que tienen un longitud de 1m) es del mismo orden. Si se toma en cuenta que el tiempo típico de vuelo de un ion en el tubo es del orden de 10 μ s o más, entonces se está hablando de errores relativos en tiempo en el orden de 10^{-3} . El laser pulsa la luz a un ritmo de 10Hz, de tal manera que el proceso que se acaba de describir se repite 10 veces cada segundo, y los datos que se obtienen durante algunos minutos se acumulan en un solo espectro con el fin de reducir las variaciones estadísticas inherentes al proceso.

4. El sistema YAG-MOPO.

El sistema YAG-MOPO usado para producir un haz de luz

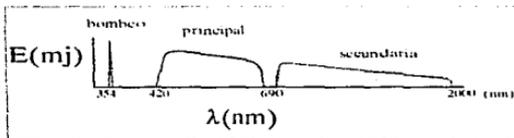
coherente, monocromática y de alta potencia es, sin lugar a dudas, una de las partes más importantes del arreglo. Lo constituyen como su nombre lo indica, dos partes: como primer elemento se usa un laser de bombeo de Nd:YAG con salida fundamental en los 1064nm, dotado de un generador de armónicos y como segundo elemento un



(a) Esquema del principio de conversión paramétrica de frecuencia



(b) características del sistema Nd:YAG-MOPO



(c) dependencia de longitud de onda Vs. energía.

Fig. 2.8 (a) Ilustración del proceso de conversión paramétrica. (b) esquema de bombeo del YAG al MOPO. (c) esquema de la dependencia de la energía de salida en función de la frecuencia en el MOPO

sistema de oscilación paramétrica, bombeado por la línea del tercer armónico del YAG y que se conoce como MOPO llamado también "oscilador paramétrico" y que consiste en un conjunto de cristales birrefringentes y de un arreglo de cavidades resonantes que permiten variar la longitud de onda de la luz de bombeo en un

intervalo muy amplio (desde .4 hasta 2 micrómetros en longitud de onda) con un ancho de línea, que es medida de la monocromaticidad del haz, de sólo 0.2 cm^{-1} y con potencia suficiente para que, una vez enfocada la luz en la región de interacción, el proceso multifotónico se lleve a cabo. En la figura (2.7) se presenta un esquema que representa el proceso por medio del cual se logra la inversión de población en el laser de Nd:YAG, que se discute en la siguiente subsección. En la figura (2.8) se presentan las características cuantitativas del sistema YAG:MOPO que serán discutidas en el parrafo 2.3.2 relacionadas con el proceso de conversión paramétrica.

4.1 El Laser de Nd:YAG.

El laser que se utiliza para bombear al MOPO es un sistema de cuatro niveles que tiene como elemento activo una barra de Neodimio dopada con granadina de aluminio-Ytrio (de ahí el acrónimo de Nd:YAG). Los niveles que participan en el proceso de generación estimulada de luz corresponden al estado 3 veces ionizado de la mezcla arriba mencionada (figura 2.7). El medio activo es bombeado ópticamente por lámparas pulsadas de descarga que excitan a las líneas infrarrojas y de cercano infrarrojo en el neodimio . Los electrones excitados en el nivel A decaen rápidamente al nivel B ($F_{3/2}$), es decir, el nivel superior de la transición, y permanecen ahí durante un tiempo aproximado de decaimiento espontáneo de 230 milisegundos.

A partir de este estado la transición mas probable es aquella que lleva a los electrones al nivel C ($I_{11/2}$), emitiendo en este proceso un fotón de 1064 nm. Dado que la razón de decaimiento de el estado C al estado D es mayor que la correspondiente a la de B a C, la población del estado C permanece baja, por lo que es

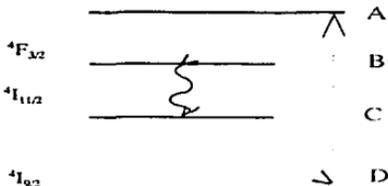
intervalo muy amplio (desde .4 hasta 2 micrómetros en longitud de onda) con un ancho de línea, que es medida de la monocromaticidad del haz, de sólo 0.2 cm⁻¹ y con potencia suficiente para que, una vez enfocada la luz en la región de interacción, el proceso multifotónico se lleve a cabo. En la figura (2.7) se presenta un esquema que representa el proceso por medio del cual se logra la inversión de población en el laser de Nd:YAG, que se discute en la siguiente subsección. En la figura (2.8) se presentan las características cuantitativas del sistema YAG:MOPO que serán discutidas en el parrafo 2.3.2 relacionadas con el proceso de conversión paramétrica.

4.1 El Laser de Nd:YAG.

El laser que se utiliza para bombear al MOPO es un sistema de cuatro niveles que tiene como elemento activo una barra de Neodimio dopada con granadina de aluminio-Ytrio (de ahí el acrónimo de Nd:YAG). Los niveles que participan en el proceso de generación estimulada de luz corresponden al estado 3 veces ionizado de la mezcla arriba mencionada (figura 2.7). El medio activo es bombeado ópticamente por lámparas pulsadas de descarga que excitan a las líneas infrarrojas y de cercano infrarrojo en el neodimio . Los electrones excitados en el nivel A decaen rápidamente al nivel B ($F_{3,2}$), es decir, el nivel superior de la transición, y permanecen ahí durante un tiempo aproximado de decaimiento espontáneo de 230 milisegundos.

A partir de este estado la transición mas probable es aquella que lleva a los electrones al nivel C ($I_{11/2}$) , emitiendo en este proceso un fotón de 1064 nm. Dado que la razón de decaimiento de el estado C al estado D es mayor que la correspondiente a la de B a C, la población del estado C permanece baja, por lo que es

relativamente fácil generar una inversión de población entre el estado B y el C. En términos generales, un laser construido sólo del medio activo y de una cavidad resonante, emite radiación laser con la misma amplitud en tiempo que el pulso de las lámparas de bombeo. Sin embargo, si dentro de la cavidad se introduce un switch electro óptico del tipo "Q-switch", es posible obtener pulsos muy cortos y muy potentes de luz. Lo que el switch mencionado hace es prevenir pérdidas de energía durante el proceso de inversión de población, para liberarla despues súbitamente en un



$$Tr(D-A) < Tr(A-B)$$

$$Tr(B-C) < Tr(C-D)$$

Tr = razón de transición.

figura 2.7 esquema de cuatro niveles del laser Nd:YAG

pulso temporal muy corto (8 ns). El switch Q está compuesto por una celda de Pockels, un polarizador, un reflector de alta reflectancia y una placa de cuarto de onda. El funcionamiento detallado del Q-switch, del sistema de cuatro niveles y de las cavidades resonantes del laser pueden encontrarse en [2.8].

4.2 El MOPO

En términos muy generales , la operación del oscilador se puede entender como el fenómeno inverso del mezclado de frecuencias con el que se generan los armónicos (figura 2.8a) y consiste en que el fotón de bombeo proveniente del laser Nd:YAG se " parte " en dos fotones cuya suma en frecuencia iguala a la del fotón inicial, y de igual manera la suma en momentum. La sintonía en frecuencia se logra por medio de la variación del ángulo del eje óptico del cristal con respecto a la dirección de propagación del haz de luz. En la figura (2.8c) se presenta la dependencia de la energía en función de la longitud de onda. El máximo de energía que se puede obtener de este sistema es de 50 mJ, y la energía de bombeo es del orden de 500 mJ. El MOPO debe su nombre a que esta constituido de dos partes importantes: El oscilador maestro , que consta de una rejilla de difracción en la que incide de manera rasante parte del haz proveniente del YAG, y que junto con un par de espejos de alta reflexión y un cristal no-lineal BBO(Borato Beta) constituyen la llamada "cavidad de littman" que es un resonador óptico en que se produce un haz relativamente débil de luz por un proceso de conversión no lineal a una frecuencia particular (frecuencia señal), que se puede cambiar con sólo rotar al cristal , y que es usada como "semilla " para la siguiente fase de conversión debido a que es un haz casi puro en frecuencia cuyo el ancho de línea es del orden de 10^{-4} nm. La segunda parte del MOPO , denominada oscilador de potencia, tiene como función el hacer que la onda monocromática que sale del oscilador maestro gane potencia a expensas del haz de bombeo por el mismo proceso no lineal. El oscilador de potencia consiste en un resonador óptico inestable, formado por espejos de reflexión selectiva , y que permiten a la señal semilla interactuar con el cristal BBO y con el haz de bombeo, convirtiendo la energía de este último en energía del haz con frecuencia igual a la de la semilla más otra onda, llamada "ociosa", y cuya frecuencia es igual a la diferencia en frecuencias entre el haz de bombeo y la del oscilador maestro. La sincronía para la condición simultánea de ajuste de fases (apéndice A) entre el oscilador maestro y el de potencia lo realiza un servomecanismo

controlado por un procesador digital. De igual manera la sintonía en frecuencia está completamente automatizada, y se controla mediante software desarrollado para este propósito. Esto marca una diferencia muy importante entre el sistema, basado en conversión no lineal, y los sistemas anteriores, basados en la fluorescencia de tintes orgánicos que en algunos casos son cancerígenos.

Dado que el MOPO es un sistema muy novedoso y que constituye una parte fundamental del arreglo experimental que se emplea para observar la Ionización Multifotónica ,es oportuno presentar los principios básicos en que se basa la conversión de frecuencia que ocurre en el interior del cristal BBO.

a. Proceso de conversión paramétrica

Supóngase que una onda electromagnética de alta intensidad y con frecuencia w_3 , incide sobre un cristal anisotrópico con dependencia cuadrática de la polarización respecto al campo (ec.A.1, apéndice A) y que en dicho cristal existe una onda débil con frecuencia w_1 , (que en el lenguaje de la oscilación paramétrica es llamada "señal" y que puede provenir de una fuente externa , o bien, ser producida en el interior mismo del cristal por luminiscencia paramétrica [2.9]); Entonces, como resultado del comportamiento no lineal del cristal, la onda w_3 , se mezclará con la onda w_1 , para producir una onda con la frecuencia $w_2 = w_3 - w_1$. Lo anterior ocurrirá durante una longitud muy corta del cristal (la así llamada "longitud de coherencia") mientras la fase entre las ondas no difiera mucho. En el momento que la interacción de las ondas w_3 y w_1 , empieza a ser destructiva - lo cual ocurre por tener frecuencias distintas - w_2 , desaparece. Sin embargo ,aprovechando las propiedades anisotrópicas del cristal se logra que las fases de w_3 , w_1 , sean las mismas . En estas condiciones se logra que el proceso de generar la onda w_2 , (llamada "ociosa")ocurra a lo largo de todo el cristal. Como ahora, además de las frecuencias iniciales, existe la onda w_2 , ésta puede a su vez interactuar con

w_2 , y producir así una onda con frecuencia igual a su diferencia $w_2 - w_1 = w$, lo que equivale a decir que la onda w , se ve reforzada. Todo lo anterior a expensas de la energía de la onda w_1 .

El proceso es más eficiente aún si se coloca el cristal no lineal dentro de una cavidad resonante, normalmente formada con espejos de reflectividad selectiva, que permite reforzar la generación de las nuevas frecuencias al reflejar la luz producida varias veces dentro del medio. La figura (2.9) muestra un esquema del proceso anterior.

La condición de ajuste de fase que se mencionó anteriormente cambia si se modifica algún parámetro del cristal, ya sea la temperatura o el ángulo del eje óptico del cristal respecto a la dirección de incidencia del haz. En el caso del MOPO el cambio en la condición de ajuste de fase se realiza variando esto último, es decir, que el parámetro importante en el MOPO es el ángulo. Cuando la condición de fase cambia, entonces la nueva condición será favorable para una nuevo par de frecuencias w_1' y w_2' y desfavorable para las frecuencias anteriores w_1 y w_2 . Así que con sólo variar el ángulo del cristal, se varía también la frecuencia de las ondas resultantes del proceso. El fenómeno que se ha explicado arriba de

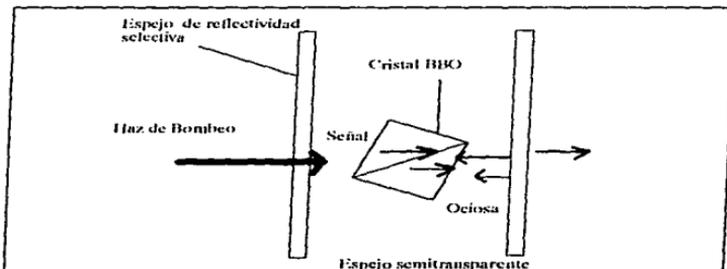


Fig. 2.9 El proceso de ganancia paramétrica se incrementa si el cristal BBO se coloca en un oscilador con espejos de reflectividad selectiva.

una manera general se puede explicar de manera más formal usando las ecuaciones de Maxwell en medios dieléctricos y es un tema muy amplio de estudio. En el apéndice A se presentan algunos aspectos de la conversión no lineal de frecuencia desde este enfoque y se obtienen algunas expresiones para la energía mínima por unidad de área que el laser de bombeo debe proporcionar para que el proceso ocurra, así como una relación para el cambio de frecuencia en función del ángulo.

4.3 Arreglo Óptico

A pesar de que la potencia a las salida de el MOPO es considerable (3×10^7 W/cm²), no es suficiente en caso de que se desea usar la salida del MOPO de manera directa, para inducir absorciones multifotónicas que puedan en algún momento ionizar a los átomos, pues el orden de la potencia por unidad de área que se requiere para lograrlo es de 10^8 W/cm², como mínimo [4.1]. Por ésta razón se emplea una lente de enfoque con foco de 17.5 cm para incrementar la intensidad de la salida del MOPO en la región de interacción. La figura 2.10 ilustra tal arreglo.

A fin de determinar el diámetro del haz en el punto de enfoque, se perfora una lámina de aluminio enfocando la salida del MOPO en ella y se mide el diámetro de la perforación con un microscopio. Así se determinó que el haz tiene un diámetro máximo de 90 micrómetros s. Con este dato y con la lectura de un medidor de flujo de energía Newport modelo 8125, se determina, para cada corrida, la densidad de energía por unidad de área en la región donde interactúa el laser con la muestra gaseosa. Inicialmente se planeó un sistema óptico para tener control de la potencia en la región de interacción, pero en las pruebas preliminares del

espectrómetro no se utilizó. Sin embargo se sugiere el uso de este arreglo para etapas experimentales posteriores del aparato en las cuales se desee estudiar la dependencia de la señal respecto a la potencia de el haz. En la parte instrumental de [2.1], se detalla la geometría de este arreglo.

Finalmente, en lo que respecta a la seguridad, se construyó una cubierta de protección a lo largo de la trayectoria de la luz proveniente del MOPO dotada de interruptores en las puertas a fin de evitar que por alguna apertura accidental de la trayectoria

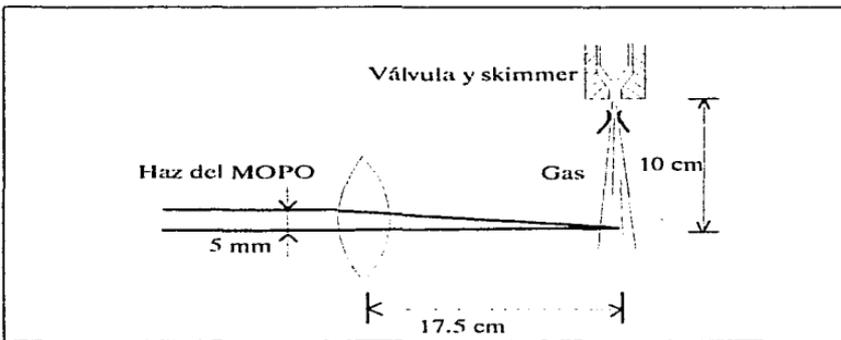


Fig. 2.10 Esquema del arreglo de enfoque de la luz del MOPO.

óptica algún usuario reciba radiación producida por reflexiones directas o especulares, pues ambas, para los lasers de clase IV como lo son el YAG y el MOPO, pueden resultar en un daño severo en los ojos ó en la piel.

En este capítulo se han presentado las características más sobresalientes y descrito el funcionamiento de los elementos del sistema experimental de manera general. Se está ahora en condiciones de entender como se llevaron a cabo las primeras

pruebas del funcionamiento de el espectrómetro y, al mismo tiempo, de observar las evidencias que se obtuvieron de fenómenos de absorción multifotónica del Xenón.

referencias

- [2.1] Mendoza A.A, tesis de licenciatura, UNAM, facultad de ciencias, 1997, México.
- [2.2] Wiley W.C., McLarent I.H, *Time of Flight Mass Spectrometer With Improved Resolution*, The Rev. of Scientific Inst. vol. 26, No. 12, december 1955, 1150-1157.
- [2.3] Kantrowitz A., Grey J., *A High Intensity Source for Molecular Beams. Part I. Theoretical*. The Review of Sci. Inst., vol. 22, No. 5, may 1951, 328-332.
- [2.4] Kistiakowsky G.B , Slichter W., *A High Intensity Source for Molecular Beams. Part II. Experimental*. The Review of Sci. Inst., Vol. 22, No. 5, may 1951, 333-337.
- [2.5] Anderson J.B., Anders R.P., Fenn J.P., *Supersonic Nozzle Beams*, Adv. Chem. Phys. 10, 275 (1966)
- [2.6] Smalley R.E., Wharthon L., Levy D.H., *Molecular Optical Spectroscopy With Supersonic Beams and Jets*. Acc. Chem. Res. 10, 139 (1977).
- [2.7] O'Hanlon J.F., *A User's Guide to Vacuum Technology, second edition.*, Wiley Interscience, New York, 1989.
- [2.8] Svelto O., *Principles of Lasers*, Second Edition, Plenum Press, (1986).
- [2.9] Landsberg G., *Óptica, V. II, Traducción al Español*; Editorial MIR, Moscú, 1984.

CAPÍTULO III

IONIZACIÓN MULTIFOTÓNICA EN XENON.

1. Introducción

Una vez que se ha presentado el arreglo experimental que se construyó para observar la Ionización Multifotónica y que se ha explicado la técnica de identificar niveles excitados en átomos haciendo uso de éste, se presentan ahora las primeras pruebas que se hicieron usando el espectrómetro de tiempo de vuelo y el sistema MOPO-YAG. Se muestran los primeros espectros de tiempo de vuelo obtenidos y los espectros de el número de iones producidos en función de la frecuencia para algunos niveles excitados. Se presenta la notación de Racah [3.1] para átomos que presentan el acoplamiento "intermedio" o $j-1$ que describe adecuadamente al átomo de Xe. Se ilustra como, a partir de los datos teóricos y experimentales disponibles [3.2] y de las reglas de selección se pueden identificar los estados observados en experimentos de absorción multifotónica.

2. descripción del experimento

En las secciones siguientes se explicarán las razones por las que se eligió el Xenón para realizar las primeras pruebas en el aparato contruido, así como la operación y preparación de los distintos elementos de el espectrómetro previas a las pruebas en ese gas.

2.1 Elección del Xenón

La elección del Xenón como la especie con la que se probó por primera vez el aparato se apoya en varias razones. En primer lugar, se decidió elegir una especie atómica debido a que el espectro de sus líneas de energía es más simple que en el caso de moléculas, pues en estas últimas, el espectro se complica por la presencia de niveles rotacionales y vibracionales. Por el motivo anterior y por el hecho que la fuente sólo trabaja con muestras gaseosas, la elección de la especie que se puede usar en las primeras pruebas se limita a los gases nobles, que son los únicos elementos que en condiciones normales de temperatura y presión se presentan en forma atómica .

En segundo lugar, la probabilidad de observar el proceso de absorción multifotónica depende del valor del estado excitado que se pretenda alcanzar y del potencial de ionización, y es mayor si estos valores son pequeños. El Xenón tiene un potencial de ionización de 12.078 eV ,el menor de los gases inertes con excepción del Radón con 10.69 eV de ahí que se haya decidido trabajar con Xe.

Finalmente, como una razón más, se encuentra en la literatura un conjunto grande de trabajos realizados con Xenón por distintos grupos : Compton et. al.[3.3] , Humpert et. al., [3.4], Sato et. al. [3.5]; los cuales se pueden tomar como guía para conocer, en primera aproximación, las condiciones mínimas en energía que el laser debe proporcionar para inducir transiciones multifotónicas.

2.2. Preparación y operación del sistema

Para obtener los espectros de tiempo de vuelo del Xenon es necesario preparar el sistema experimental y elegir el

valor de los distintos parámetros de éste a fin de que se puedan observar los iones producidos por absorción multifotónica.

Antes de activar el sistema que proporciona la luz, se hace pasar una corriente de nitrógeno de alta pureza por un sistema de conductos del que están dotados el YAG y el MOPO a fin de limpiar los distintos elementos ópticos de éstos. lo anterior es muy importante debido a que cualquier impureza en la superficie de los cristales o dicróicos que se encuentren en el interior del YAG y el MOPO puede producir un mal funcionamiento o un daño serio en estos componentes. Después de lo anterior se acondiciona el sistema YAG:MOPO, durante 1 hora antes de buscar señal, con el fin de que alcance la potencia de salida que se requiere y se establezca térmicamente. Lo anterior es necesario debido a que antes de este tiempo la potencia del MOPO y el YAG fluctúan en forma no deseada.

Una vez que el sistema de luz esta operando de manera óptima se hace pasar el haz de la salida del MOPO por debajo de la salida de la válvula pulsada a fin de que los átomos que salgan de ella intersecten al haz sin enfocar del MOPO, que en estas condiciones tiene un diámetro de 5mm . Lo anterior se logra por medio de un arreglo de prismas como se mostró en la fig.(2.1) del capítulo anterior. Después de alinear geoméricamente el haz de luz y de lograr que se intersecte perpendicularmente con el gas se coloca, antes del punto de intersección de la luz y el gas, una lente positiva de 17.5 cm de foco, a fin de que el punto de enfoque de la luz proveniente del MOPO coincida en el lugar apropiado con los átomos que provienen de la fuente. La figura (2.10) del capítulo anterior ilustra tal arreglo. Como se puede apreciar de esa figura, el punto de enfoque se encuentra a una distancia aproximada de 10 cm por debajo de la salida de la válvula pulsada.

Posterior a ésto se conecta el contenedor del Xenon a la válvula de haces y se ajusta la presión a la entrada de la válvula a 1 Atm con una regulador de presión de diafragma, a fin de evitar que el skimmer se dañe por exceso de presión, como se indicó en la sección 3.1 del capítulo 2. El tiempo de apertura de la válvula se fija en un valor de 600 μ s para el cual la presión en la cámara de vacío no sobrepasa los 10⁻⁷ torr , pues se observó que para valores en tiempo de apertura mayores el vacío no es adecuado para el experimento. Se polarizan el arreglo de placas paralelas de la región donde se generan los iones y el sistema de detección de placas microcanales como se muestra en las figs.(2.8) y (2.9)del capítulo 2 . Se inicia el sistema de sincronía entre el disparo del YAG y la apertura de la válvula con los valores de retardo que permitan la coincidencia en tiempo entre la luz del MOPO y el haz de átomos proveniente de la válvula pulsada y ,simultáneamente, como se ilustra en la Fig (2.6) del capítulo 2, se activa el proceso de adquisición del multicanal. Los valores de retardo entre el disparo del laser y la apertura de la válvula se estimaron observando en un osciloscopio Techtronix de 500 Mhz el pulso TTL proveniente del YAG y un pulso TTL que produce el controlador de la válvula (Iota one, General Valve Corporation) cuando la válvula se abre ,como se indicó en su oportunidad en el capítulo anterior.

El sistema multicanal se activa simultáneamente con el disparo del láser e inicia con esto la adquisición de cuentas en sus canales para la medida del tiempo de vuelo, pero, a fin de que el proceso de adquisición tenga sentido es muy importante establecer adecuadamente el número de canales y el tiempo de acumulación o residencia en cada uno de éstos . Los valores adecuados de número de canales y tiempo de acumulación se asignan por medio de una computadora que está conectada al multicanal. Para poder asignar valores convenientes es necesario tener por adelantado una idea aproximada del tiempo de arribo de los iones que se van a

observar. Esta estimación se obtiene realizando una simulación del vuelo de los iones usando el software SIMION que para el caso del Xe (133 u.m.a.) da valores del orden de 16 μ s. Es importante también ajustar el número de espectros que debe acumular el escalador, y este número puede ir de un espectro, correspondiente a un disparo del YAG, hasta 19 mil. Si se tiene una idea del orden de magnitud del tiempo de vuelo que se va a medir y se eligen de manera adecuada los parámetros del escalador es posible entonces ver sin dificultad la señal de iones.

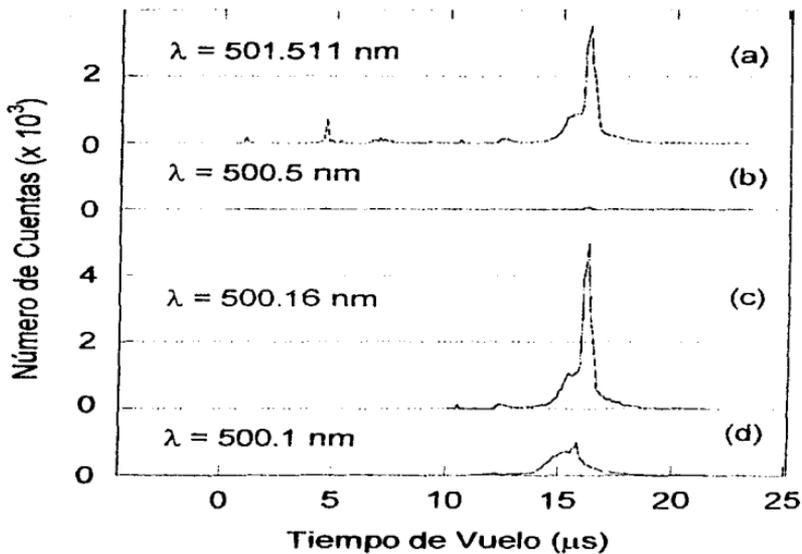
Una consideración final, previa a la realización del experimento, se refiere a la potencia que proporciona el sistema de luz YAG:MOPO, la cual deberá ser suficiente para poder observar el fenómeno. De la literatura publicada sobre trabajos similares al que aquí se presenta en Xenón se conoce el umbral, en unidades de energía por unidad de área, que se requiere [3.6] para poder observar la ionización multifotónica y éste del orden de 10⁹ w/cm². En el capítulo II, referente al arreglo experimental, en la sección 2.3.3, se mencionó que el diámetro del haz del MOPO en el punto de enfoque es de 90 micrómetros. La potencia de salida del MOPO es función de la longitud de onda y proporciona, a partir de 450nm, energías típicas de 10 a 30 mJ en pulsos de 8 ns y su máxima potencia se encuentra cerca de 500 nm. Tomando en cuenta el diámetro de enfoque y las energías arriba referidas se tiene un intervalo disponible de potencia por unidad de área desde 1.9x10¹⁰ hasta 1.0 x10¹² W/cm². Por lo tanto el MOPO, junto con el sistema de enfoque, proporcionan la potencia por unidad de área suficiente para poder observar la absorción multifotónica en Xe.

3. Espectros en tiempo de vuelo y frecuencia

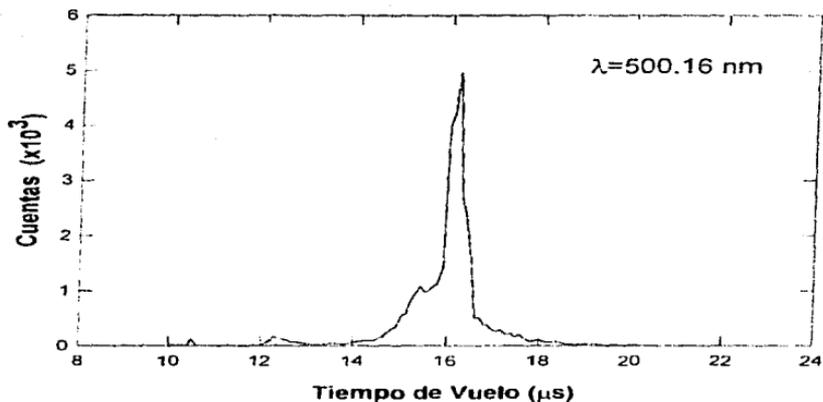
Una vez que se activa y prepara el sistema experimental de la manera descrita, el siguiente paso consiste en buscar alguna señal de iones. Para tal objeto se hace un barrido en frecuencia en el intervalo donde se tiene mayor potencia, cerca de los 500nm . Al hacer ésto se observa que, en la vecindad de algunos valores específicos en frecuencia , aparece súbitamente señal de iones en el monitor del multicanal, mientras que para valores en el intervalo fuera de la vecindad de esas frecuencias aparece poca o ninguna señal, lo cual indica que las frecuencias en donde aparece la señal corresponden probablemente a un estado resonante ó autoionizante [3.7],[3.8]. Lo anterior se ilustra en el conjunto de espectros que se muestran en las Gráficas 3.1 (a, b, c y d), obtenidos en un barrido con un número de acumulaciones de 20000 ciclos en el multicanal .

Cerca de los 500.1 nm (d) aparece señal de iones con tiempo de arribo de $16\mu s$, que es donde se esperaba ver aparecer el Xenon (masa, 131 uma) según estimaciones hechas con el software SIMION para el voltaje de 200V aplicado en las placas . Conforme se incrementa la frecuencia, la señal alcanza un máximo(c) , y empieza a decrecer . De ésta forma, a los 500.5 nm (b) la señal que se detecta es muy pequeña . Conforme se sigue incrementando el valor de la frecuencia aparece nuevamente señal de iones, alrededor de 501.5 nm (a). Los pequeños picos que aparecen en la parte izquierda del pico principal en esa frecuencia provienen de impurezas en la región de ionización, probablemente vapor de agua y algún hidrocarburo. El hecho que en la frecuencia intermedia de 500.5nm entre 500.1 y 501.5 no aparece señal indica que, si se ocurre ionización multifotónica en las longitudes de onda donde aparece señal, ésta corresponde a distintos niveles. En las gráficas 3.2 (a) y (b) se muestran en una escala de tiempo más precisa la forma de los espectros de tiempo de vuelo para las frecuencias 501.5nm y para 500.16 nm, respectivamente.

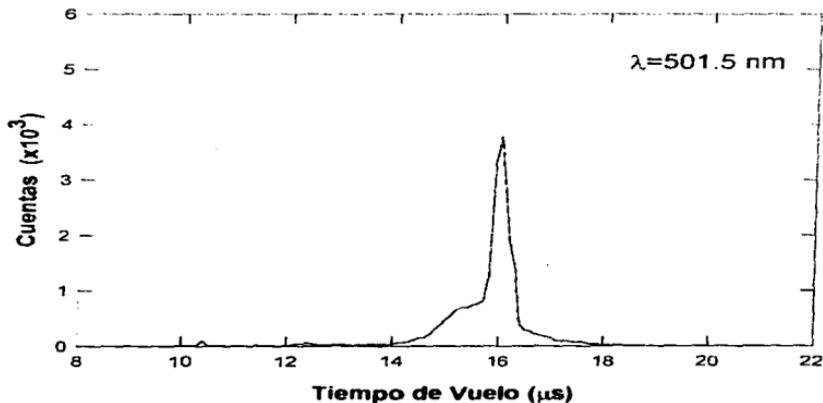
Respecto a esto último puede notarse que, en el espectro de tiempo de vuelo a 500.16nm, el número máximo de cuentas



Graf. 3.1 Distintos espectros de tiempo de vuelo a diferentes longitudes de onda del MOPO



Graf. 3.2.a Espectro de tiempo de vuelo de Xe⁺ en 500.16 nm



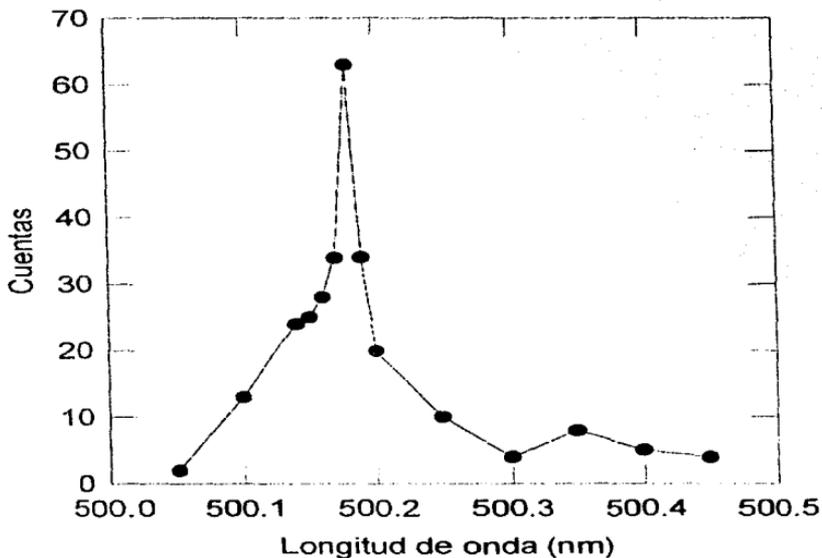
Graf. 3.2b Espectro de tiempo de vuelo de Xe⁺ en 501.15 nm

es mayor que el que se obtiene para 500.1 nm . Ambos espectros de tiempo corresponden a la misma vecindad o intervalo en el que aparece señal y la variación en intensidad sugiere que, si se hace un barrido fino cerca de esos valores se puede obtener la dependencia de la señal de iones en función de la longitud de onda .

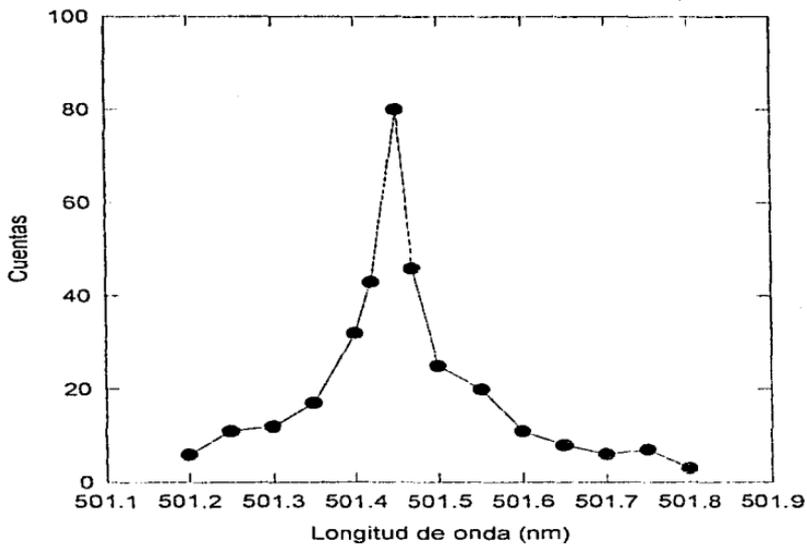
La gráfica 3.3 muestra el resultado de relizar tal barrido alrededor de los valores arriba mencionados entre 500.05 y 500.45 nm , a intervalos de .05 nm con un refinamiento adicional de .025nm cerca del máximo,el cual corresponde aproximadamente a 500.16 nm. Los espectros en tiempo de vuelo a partir de los cuales se obtuvo la gráfica 3.3 corresponden a 2000 adquisiciones en el multicanal. Un proceso análogo se realiza en la vecindad de los valores cercanos a 501.5 nm y el resultado se muestra en la gráfica 3.4 , con un máximo aproximado en 501.45 . En esas gráficas se puede notar la dependencia entre el número máximo de cuentas obtenido de varios espectros de tiempo de vuelo y la longitud de onda a la que se producen. La dependencia del número de iones producidos en función de la longitud de onda muestra el comportamiento que caracteriza los fenómenos de absorción multifotónica predichos por el modelo de Bebb y Gold en el capítulo 1 y mostrados en la grafica 1.1 del capítulo I. A partir de estos espectros de número de cuentas vs. longitud de onda se puede asignar los niveles de energía correspondientes. La asignación de estados se discute en la sección 5.

Como último punto antes de discutir la asignación de estados y las conclusiones finales de este trabajo, es conviene revisar la notación que se emplea para caracterizar los niveles excitados para el Xenón.

4. Notación y reglas de selección



Graf. 3.3. Espectro de señal de iones en función de la longitud de onda para el intervalo de 500.05 a 500.45 nm



Graf. 3.4 Espectro de señal de iones en función de la longitud de onda para el intervalo de 501.2 a 501.8 nm

La notación que se emplea para identificar un estado excitado de algún sistema atómico depende en gran medida del tipo de átomo que se quiera caracterizar. Lo anterior es debido a que el desdoblamiento de las líneas espectrales en los átomos depende del tipo de acoplamiento que predomina en el átomo, ya sea el que ocurre por la interacción electrostática no radial entre electrón y electrón en el átomo ó el que ocurre entre el espín de los electrones y el núcleo. El caso en que predomina la interacción electrostática no radial se denomina "acoplamiento Rousell Saunders" o "acoplamiento LS" y para identificar los niveles de energía de los átomos que la presentan se usa una notación específica. El acoplamiento que se refiere a la interacción entre el espín de los electrones y el núcleo se debe a un efecto relativista [3.9] y se denomina acoplamiento espín órbita ó acoplamiento jj. Los átomos que presentan este acoplamiento tiene, igualmente su notación particular.

En el Xenón los dos acoplamientos arriba mencionados contribuyen en la configuración de su espectro, por lo que se dice que el Xenón tiene "acoplamiento intermedio", que también es denominado acoplamiento j1. La notación que se usa para estos casos, sugerida por Racah [3.1] tiene, para el Xenón la forma general siguiente:

$$np^6 ({}^{2S+1}L,)n'l[K],$$

El significado de los términos que aparecen en esta expresión es el siguiente: Inicialmente, en el estado base, los seis electrones más externos del Xenón se encuentran en una capa cerrada np^6 . Posteriormente, cuando el campo interactúa con el átomo, quedan 5 electrones en np y el restante va a un estado excitado en $n'l$, donde n' es un nivel de energía mayor o igual nivel de donde parte el electrón y

l es el valor del momento orbital del electrón excitado. La letra S corresponde al valor del spin total de los 5 electrones que quedan en el estado p, llamados electrones de la coraza; la letra L es el valor del momento angular orbital de la coraza; j es el valor del momento angular más el spin total de la coraza; K es el momento angular total de la coraza más el momento angular del electrón excitado, es decir, $K = j + l$ y, por último, $J = K + 1/2$ es el momento angular total del átomo, es, decir, al valor de K más el valor del espín del electrón excitado.

Existen reglas de selección muy conocidas para transiciones con un sólo fotón en términos de cómo deben cambiar los números cuánticos relacionados con el momento angular en sistemas atómicos. Sin embargo, para transiciones con varios fotones no es sencillo establecer reglas parecidas, y en particular para las especies con acoplamiento intermedio es aún más complicado, pues se definen varios parámetros (J, j, L, l, K) relacionados con el momento angular y no se puede establecer alguna relación directa entre estos números y las transiciones que son posibles. Sin embargo se pueden establecer condiciones, relacionadas con la paridad de las funciones de estado asociadas a los estados excitados y con el momento angular total J definido en la notación de Racah, que permiten saber, en función del número de fotones absorbidos el tipo de transiciones que son posibles. El tema es demasiado amplio [3.9], pero se pueden establecer dos reglas directas que se deben cumplir: para transiciones que ocurren con un número par de fotones, la paridad de la función de onda del estado inicial debe ser igual a la paridad del estado final y el cambio en el momento angular total J debe ser un número par. Para transiciones en las que interviene un número impar de fotones debe ocurrir lo contrario, es decir, que la paridad del estado final debe cambiar y el cambio en J es impar. Para el caso del Xenón el estado base tiene paridad par, por lo que para transiciones con número par de fotones el estado final debe tener,

consecuentemene,paridad par.

5 Identificación de estados

Una vez que se observa el comportamiento esperado de la señal de iones en función de la longitud de onda, el siguiente paso consiste en asignar un estado excitado del Xenón a esos niveles. Para este propósito se hace uso de tablas en energía para estados excitados del Xe recopiladas por Moore[3.2]. En esas tablas se reporta la energía en cm^{-1} de un conjunto de líneas calculadas de manera teórica y otras medidas experimentalmente así como la notación espectroscópica correspondiente para cada nivel. Para identificar el estado al que corresponde la transición observada se procedió de la siguiente manera: A partir de los valores reportados se hizo una tabla de la frecuencia de Bohr respecto al estado base para el conjunto de 240 líneas que se presentan en [3.2]. Se dividió cada una por números enteros del 3 al 7 y se hizo una nueva tabla con el resutado de esas operaciones. Una vez hecho lo anterior se comparan los valores obtenidos de las divisiones por números enteros con las frecuencias para las cuales se observaron los máximos ilustrados en las gráficas 3.3 y 3.4.

Al realizar lo anterior, no fue posible asignar estados particulares del Xenón reportados en las tablas con los valores encontrados en el experimento, pues a pesar que se encuentran estados con valores que implican una transición con 4 fotones y que corresponden a los estados $5p^3(2p_{3/2})5d[1/2]_{3/2}$, para el máximo de 501.45 y $5p^3(2p_{3/2})5d[1/2]_{1/2}$, para 500.16, éstos tienen paridad impar y uno de ellos tiene cambio en J impar, mientras que el estado base del cual parten tiene $J=0$ y paridad par; es decir que no satisfacen las condiciones de paridad que se discutieron en la sección 4. Una razón que explica lo anterior consiste en la posibilidad de que las líneas con la paridad adecuada no estén reportadas en las tablas que se consultaron. Otra posibilidad surge de suponer que la

calibración en frecuencia del MOPO en estas primeras pruebas no estaba adecuadamente establecida. Considerando esta última posibilidad se encontraron dos niveles de los denominados autoionizantes $[3.7][3.8]$, en la tabla consultada: el $5p^3(2p_{1/2})8d[3/2]_{3/2}$ y el $5p^3(2p_{1/2})10s[1/2]_{1/2}$, que muestran una diferencia en la longitud de onda de sus transiciones al estado base cercanas a la diferencia en longitud de onda de los máximos observados en el presente experimento, y que además satisfacen las condiciones de paridad y cambio en J necesarias para una transición con 5 fotones, si se supone que existe un corrimiento sistemático en la calibración del MOPO. Otra posibilidad que se ha discutido es un efecto conjunto entre absorción multifotónica, para excitar, y el efecto del campo eléctrico entre las placas, para ionizar.

6 Conclusiones

Se da fin al presente trabajo con un conjunto de conclusiones y comentarios sobre los resultados obtenidos y sobre los prospectos y posibilidades de el aparato construido para etapas posteriores y se finaliza con algunos comentarios sobre las posibles aplicaciones de la técnica aquí presentada.

En este trabajo se han presentado los conceptos y características del fenómeno de IMR, junto con algunos esquemas teóricos relacionados a estos fenómenos. A partir de esos modelos se vió la dependencia particular que tiene los procesos que ocurren por absorción multifotónica respecto a la intensidad y la longitud de onda de la luz que interactúa con los átomos. Se han mostrado, asimismo, los distintos elementos del arreglo experimental que se diseñó para observar los procesos de ionización multifotónica en especies gaseosas, y se explicó la técnica que se emplea para distinguir, por su tiempo de vuelo, especies atómicas con diferente relación carga-masa. Se explicó también el

principio físico por el cual el MOPO realiza la conversión en frecuencia de la luz que le llega del YAG. Se mostraron los primeros espectros en tiempo de vuelo obtenidos en el aparato construido y la manera en que depende el número de iones producidos en función de la longitud de onda, que refleja el comportamiento que se representa en la gráfica 1.1 del capítulo de conceptos.

El objetivo en esta primera etapa de construcción del espectrómetro correspondió a verificar que los distintos elementos del tubo de tiempo de vuelo funcionaran de manera adecuada, que la sincronía entre ellos es la correcta y que los sistemas de detección y la electrónica asociada trabajaran convenientemente, lo cual se ha cumplido ampliamente con la presentación de los primeros espectros de tiempo de vuelo obtenidos. Debido a que la identificación de los estados excitados está aún indefinida, la interpretación clara de lo que ocurre corresponderá a una etapa posterior, en la que se pueda establecer de manera precisa la calibración en frecuencia del MOPO y así determinar si hay un error sistemático en la medida de las longitudes de onda que produce así como investigar el efecto de la variación del voltaje de las placas paralelas sobre la señal obtenida.

Respecto a la parte instrumental, aunque en este trabajo se presentó sólo lo concerniente a los iones, el espectrómetro ha sido dotado posteriormente de un sistema muy preciso para determinar la energía de los fotoelectrones producidos por absorción multifotónica y se han hecho ya medidas en él. Adicionalmente, se ha instalado en el sistema MOPO un sistema doblador de frecuencias que permite alcanzar regiones que no era posible acceder con el arreglo anterior. Un conjunto amplio de medidas en la zona del UV son ahora posibles con el aparato construido. Se sugiere fuertemente verificar la calibración en frecuencia del MOPO con líneas ya conocidas [3.3], [3.4] a fin de asegurar que el MOPO proporciona las frecuencias deseadas. Con el nuevo doblador

de frecuencias esta calibración será fácil de realizar, pues se podrán estudiar varias líneas reportadas en la literatura en el ultravioleta. Algo que conviene aquí añadir es que es deseable verificar, adicionalmente a lo anterior, la calibración del laser con el uso de un monocromador de alta precisión.

Se concluye este trabajo con algunos comentarios sobre las posibles aplicaciones que se pueden realizar con el aparato que se presentó en esta tesis y de la técnica presentada.

La ionización multifotónica, dada su alta selectividad en frecuencia, se puede usar en cualquier circunstancia en que se quiera aislar una especie de otras si éstas se encuentran mezcladas: de esta manera se pueden separar de manera muy eficiente isótopos de elementos químicos, para aplicaciones en física nuclear; se pueden realizar análisis de impurezas o trazas de elementos químicos en muestras gaseosas (lo cual es muy útil, por ejemplo en estudios de contaminación ambiental); es posible, asimismo estudiar, preparando adecuadamente las muestras, la presencia de elementos con bajas concentraciones en tejidos orgánicos para estudios en biomedicina ; realizar estudios de la estructura y propiedades de fulerenos y clusters y de estructuras moleculares complejas. Se ha visto que la formación de iones negativos, fundamental en los estudios de fusión, se puede lograr de manera más eficiente si se tiene la capacidad de excitar a los átomos en estados particulares, pues de esta forma la sección total de formación de iones negativos crece. El estudio de la dinámica y la estructura de la superficie de las estrellas se puede interpretar considerando procesos multifotónicos -recuérdese que en la introducción se habló de la primer transición de dos fotones observada a millones de años luz- . El estudio de la validez de los modelos y los esquemas de teoría de perturbaciones a órdenes superiores se ha visto estimulado por el estudio de fenómenos multifotónicos . La lista de aplicaciones de la técnica es

exhaustiva, por lo cual nos reducimos a las que ya se han presentado. Lo que conviene afirmar es que lo aquí presentado es sólo el inicio de un largo y estimulante camino por recorrer para tener una visión más clara de lo que ocurre cuando luz de alta intensidad interactúa con los átomos.

referencias

- [3.1] Racah G. *On a New Type of Vector Coupling in Complex Spectra*. Phys Rev Lett. April 1 (1942), v. 61, p. 537
- [3.2] Moore C.E., *Atomic Energy Levels*, Natl. Bur. Stand. (U.S. G. P) Washington D.C. 1971, p. 113-123.
- [3.3] Compton R.N, Miller J.C. Carter A.E., Kruit P. *Resonantly enhanced Multiphoton Ionization of Xenón*. Chem. Phys. Lett. , vol. 71, No. 1, abril 1980, 87-90
- [3.4] Humpert H.J., Hippler R., Schwier H. Lutz H.O. *Multiphoton Ionization of Xenón*, Fundamental Processes in atomic collision, NATO ASI series, series B Physics Vol 134.649-655.
- [3.5] Sato K. Achiba Y. Kimura K. *A Photoelectron Spectroscopic Study of Ionization Selectivity in Resonantly Enhanced Multiphoton Ionization of Xe and Kr*. J. Chem. Phys., Vol 80, No. 1, 1 January 1984, 57-62.
- [3.6] Compton R.N, Miller J.C., Carter A.E., *Resonantly*

*enhanced Multiphoton Ionization of Xe:
photoelectron energy analysis.* Chem. Phys Lett.
V. 71, Num 1, 1 april, 1980

- [3.7] Koeckhoven S.M, Buma W.J, Lange C.A, three-Photon
Excitation of autoionizing states of Ar, Kr and
Xe between the $^2P_{1/2}$ and $^2P_{3/2}$ ionic limits. Phys.
Rev. A, V. 45, Num. 5, may 1994
- [3.8] Koeckhoven S.M, Buma W.J, Lange C.A, Four Photon
Excitation of autoionizing states of Ar, Kr and
Xe between the $^2P_{3/2}$ and $^2P_{1/2}$ ionic limits. Phys.
Rev. A . V. 51, Num. 2, february 1995.
- [3.9] Sobel'man I.I., Introduction to the Theory of
Atomic Spectra, Pergamon Press, Oxford, 1972,
capítulo 2

APÉNDICE A

SOBRE EL PROCESO DE CONVERSIÓN Ó GANANCIA PARAMÉTRICA

A.1 Introducción

Se inicia esta descripción breve de la amplificación paramétrica con una expresión que se obtiene a partir de las ecuaciones de Maxwell para un medio no lineal anisotrópico. De la solución de estas ecuaciones se obtienen expresiones específicas para algunos parámetros importantes del proceso de conversión como son: la energía umbral para iniciar el proceso de ganancia dentro de un resonador óptico, la condición en fase que las ondas que se generan deben satisfacer para que el fenómeno ocurra y, por último, una expresión para la dependencia de la longitud de onda en función de la orientación del cristal con respecto al haz de bombeo.

A.2 Ecuaciones de campo electromagnético en un material no lineal.

Cuando la luz interactúa con un material dieléctrico, la polarización de éste se modifica en función de la intensidad del campo incidente y de las propiedades intrínsecas del cristal. Existen algunos cristales que responden linealmente al campo y otros en los que la respuesta al campo es de órdenes superiores. Los cristales empleados en procesos de conversión no lineal de frecuencia tienen una respuesta cuadrática respecto al campo, dada por :

$$P_i = \sum_{j,k} d_{ijk} E_j E_k \quad (A.1)$$

Donde E_i y E_k son componentes del campo electromagnético, P_i la componente i -ésima del vector de polarización y d_{ijk} es el elemento del tensor de susceptibilidad dieléctrica característico del material. En el caso del cristal BBO en el MOPO el mencionado tensor tiene sólo 3 elementos distintos de cero e iguales entre sí [a.1]. Bajo estas condiciones, el comportamiento de la luz dentro del dieléctrico da lugar a un conjunto muy amplio de fenómenos que se estudian en el contexto de la óptica no-lineal entre los que se pueden mencionar: el efecto pockels, la suma de frecuencias, la generación de armónicos y el fenómeno de ganancia paramétrica. En las referencias que se citan al final de éste apéndice se puede encontrar información amplia sobre la mayor parte de los procesos arriba mencionados [a.2 - a.4], por lo que aquí se enfocará la atención en el proceso de ganancia paramétrica.

Para saber con precisión las condiciones y características del

proceso de ganancia paramétrica, se parte de las ecuaciones de Maxwell en dieléctricos introduciendo la dependencia no lineal del medio. Haciendo algunas simplificaciones en esas ecuaciones y por medio de identidades de cálculo vectorial se llega a la expresión:

$$\nabla^2 E = \mu_0 \sigma \frac{\partial E}{\partial t} + \epsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 P_{nl}}{\partial t^2} \quad (\text{A.2})$$

Considérese ahora [a.5] tres ondas que se propagan a través del medio dieléctrico, tales que sus frecuencias obedezcan la relación $\omega_i = \omega_1 + \omega_2$, y que la dirección de propagación sea la del eje z . Las ondas se pueden representar de la manera convencional en notación compleja de la siguiente manera:

$$E_{V_i}^{\omega_i}(z, t) = \frac{1}{2} [E_{iV}(z) e^{i(\omega_i t - k_i z)} + c.c.] \quad (\text{A.3})$$

En donde Y es la coordenada cartesiana, que puede ser y o x ; ω_i es la frecuencia de la onda (con $i = 1, 2$ y 3) y el término "c.c." se refiere al complejo conjugado de el primer sumando de la expresión a la derecha de la igualdad. El objeto de este término es el de cancelar la parte imaginaria de la expresión, de tal manera que el campo electromagnético sea real.

De (A.1), del valor de las componentes del campo eléctrico (A.3) y después de un algebra larga se puede ver que la polarización, por ejemplo, para una onda con frecuencia ω_1 , está dada por:

$$[P_{nl}^{\omega_1}(z, t)]_V = -\frac{d_{ijk}}{2} E_{3V}(z) E_{2V}(z) e^{i[(\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)z]} \quad (\text{A.4})$$

Un aspecto interesante de la expresión anterior es el hecho de que en la polarización no lineal aparecen términos mezclados de las otras ondas, es decir, la susceptibilidad no lineal "mezcla" las componentes de los campos presentes en el medio.

A fin de obtener ecuaciones útiles y manejables a partir de la expresión (A.4) es conveniente expresar todos los términos que aparecen en ella en términos de E . Por simplicidad se hace esto con cada término individualmente, y luego se reúnen todos.

Aplicando ∇^2 a (A.3) se obtiene:

$$\nabla^2 E_V^{w_1}(z, t) = -\frac{1}{2} [k_V^2 E_{1,V}(z) + 2ik_1 \frac{dE_{1,V}}{dz}] e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c.c. \quad (\text{A.5})$$

Donde se ha supuesto que la variación en la intensidad del campo respecto a z es pequeña:

$$2k_1 \frac{dE_{1,V}(z)}{dz} \gg \frac{d^2 E_{1,V}}{dz^2} \quad (\text{A.6})$$

Es decir, que no hay cambios abruptos en la intensidad de las ondas a su paso por el cristal.

por otro lado, el último término del lado derecho de la igualdad (A.2) que involucra la parcial de P_{n1} toma la forma:

$$\frac{\partial^2 P_{n1}}{\partial t^2} = \frac{1}{2} e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} \left[\frac{\partial^2 E_{1,V}}{\partial z^2} - 2K_1 \frac{\partial E_{1,V}}{\partial z} - K_1^2 E_{1,V} \right] \quad (\text{A.7})$$

Al sustituir (A.5) y (A.7) en (A.2), considerando las parciales respecto al tiempo de E y después de algunas simplificaciones y sustituciones se obtiene la siguiente ecuación diferencial

$$\frac{dA_1}{dz} = -\frac{1}{2} \lambda_1 A_1 - \frac{i}{2} \kappa A_2 A_3 e^{i(\Delta k)z} \quad (\text{A.8})$$

Donde:

$$A_j = \sqrt{\frac{n_j}{w_j}} E_j \quad (\text{A.9})$$

En las expresiones anteriores no se hace ya explícita la dependencia cartesiana, pero se sobrentiende que cada término que aparece en la ecuación se considera sobre el mismo eje. Además se usan las sustituciones siguientes:

$$w_1 \mu_0 \epsilon = k_1^2 \quad (\text{A.10})$$

$$\Delta k = k_3 - (k_1 + k_2) \quad (\text{A.11})$$

$$\kappa = d_{\alpha\beta} \sqrt{\left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0}\right) \frac{w_1 w_2 w_3}{n_1 n_2 n_3}} \quad (\text{A.12})$$

$$\lambda_l = \sigma_l \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \quad l = 1, 2, 3 \quad (\text{A.13})$$

De una manera completamente análoga se tiene, para las amplitudes de las ondas 2 y 3 que:

$$\frac{dA_2}{dz} = -\frac{1}{2} \lambda_2 A_2 - \frac{i}{2} \kappa A_1 A_3 e^{i(\Delta k)z} \quad (\text{A.14})$$

$$\frac{dA_3}{dz} = -\frac{1}{2} \lambda_3 A_3 - \frac{i}{2} \kappa A_1 A_2 e^{i(\Delta k)z} \quad (\text{A.15})$$

Las ecuaciones (A.8), (A.14) y (A.15) se toman como punto de partida para obtener las condiciones en intensidad y fase que deben satisfacerse para que ocurra la conversión en frecuencia, así como el valor de la intensidad de cada onda para cualquier punto dentro del cristal. Es por eso que se presenta la forma en que se obtienen. Además a partir de ellas se pueden obtener las relaciones llamadas de "Manley - Rowe" que indica como están vinculadas las intensidades de las ondas producidas respecto a la que la intensidad de la que las genera. Finalmente, usando la relación de fases que se debe cumplir para que el proceso sea eficiente, se puede conocer la forma en que cambia la frecuencia en función del ángulo del cristal, lo cual se presenta en la parte final del apéndice.

A.3 Las condiciones de Manley-Rowe [a.6]

Para resolver las ecuaciones que se obtuvieron en la sección anterior se hace la suposición de que la onda de bombeo W_1 es muy intensa y que no sufre cambios apreciables en su intensidad conforme avanza en el cristal, es decir que:

$$A_3(z) = A_3(0) \quad (\text{A.16})$$

Esa aproximación es en general correcta, pues la intensidad de la onda de bombeo es muy grande comparada con las ondas que se producen a la salida del MOPO: El haz de bombeo que proporciona el VAC tiene una potencia por unidad de área de $7.9 \times 10^6 \text{ w/cm}^2$ mientras que la salida máxima del MOPO, después del proceso de conversión es 10 órdenes menor.

Bajo ese supuesto, las ecuaciones que se obtuvieron al final de la sección anterior toman la forma siguiente:

$$\frac{dA_1}{dz} = -\frac{1}{2} \lambda_1 A_1 - i \frac{g}{2} A_2 e^{i \Delta k z} \quad (\text{A.17})$$

$$\frac{dA_2}{dz} = -\frac{1}{2} \lambda_2 A_2 + i \frac{g}{2} A_1 e^{i \Delta k z} \quad (\text{A.18})$$

donde :

$$g = \kappa A_3(0) = \sqrt{\left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0}\right) \frac{w_1 w_2}{n_1 n_2} d} E_3(0) \quad (\text{A.19})$$

y , además :

$$\alpha_i = \sigma_i \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_i}} \quad (\text{A.19b})$$

La solución de estas ecuaciones se puede obtener de manera relativamente directa usando la transformada de Laplace ó cualquier otro método estándar de ecuaciones diferenciales. Considerando adecuadamente las condiciones de frontera en el cristal, se obtienen como solución dos expresiones relativamente complicadas en términos de funciones hiperbólicas. Si a partir de las soluciones generales se define la ganancia G para las ondas dentro del cristal de la siguiente manera:

$$G = \left| \frac{A_1(z)}{A_2(0)} \right|^2 - 1 \quad (\text{A.20})$$

Entonces se puede probar, por ejemplo graficando G en función de Δk y usando las soluciones generales de (A.19a y b), que G es máxima para el caso en que $\Delta k=0$, es decir, para el caso en que se cumpla la relación:

$$K_3 = K_2 + K_1 \quad (\text{A.20a})$$

que es conocida como la relación de ajuste de fase. Para tal condición las soluciones generales toman la forma particular siguiente:

$$A_1(z) = A_1(0) \cosh\left(\frac{gz}{2}\right) \quad (\text{A.21})$$

y

$$A_2(z) = iA_1(0) \sinh\left(\frac{gz}{2}\right) \quad (\text{A.22})$$

De las expresiones anteriores se puede ver que, cerca de la cara del cristal donde incide el haz de bombeo, para valores pequeños de z, la componente de W_2 es nula mientras que en el interior del cristal es distinta de cero. Es decir que la amplitud de la onda 2 crece a su paso por el cristal.

Asimismo se puede mostrar de manera directa, usando las ecuaciones (A.8), (A.14), (A.15) y las relaciones (A.21) y (A.22), que las siguientes expresiones, conocidas como "condiciones de Manley-Rowe" [A.6], son ciertas:

$$-\frac{d}{dz}(A_3A_1') = \frac{d}{dz}(A_1A_1') = \frac{d}{dz}(A_2A_2') \quad (\text{A.23})$$

y que establecen que por cada fotón de la onda de bombeo (w_3) se genera un fotón de la frecuencia señal (w_1) y otro de la ociosa (w_2).

Las igualdades anteriores pueden interpretarse de la siguiente manera: dado que A_1A_1' es proporcional al flujo de fotones con frecuencia w_1 , se puede ver que por un fotón que desaparece en la frecuencia w_2 , aparece uno a frecuencia w_1 y otro a frecuencia w_3 . Dado que $w_3 = w_1 + w_2$, la energía se conserva en el proceso. Para una explicación más amplia y detallada de el significado de las relaciones (A.23) referirse a [A.7]

A.4 Ganancia paramétrica en un oscilador [A.8]

El proceso descrito en la sección anterior, de generar dos cuya suma en frecuencias sea igual a una tercera ocurre sólo una vez durante el tránsito de las ondas a través del cristal. Sin embargo, como se menciona al principio de este apéndice, si el cristal no lineal se coloca dentro de una cavidad resonante se pueden generar cantidades más grandes de señal por medio de reflexiones múltiples dentro de la cavidad, pues de este modo las ondas generadas pasan varias veces en el cristal, reforzando el proceso. Sin embargo para el proceso de ganancia amplificada por la oscilación ocurra se requiere que la onda de bombeo W , alcance un nivel umbral.

En la figura 2.9 del capítulo II se muestra esquemáticamente la cavidad resonante de el oscilador paramétrico. El tratamiento riguroso de encontrar el umbral para que el fenómeno de oscilación haga eficiente la ganancia paramétrica se basa en un formalismo autoconsistente de matrices [a.5]. Sin entrar en detalles particulares, se puede obtener una expresión aceptable de la potencia requerida para que la ganancia paramétrica tenga lugar, como se mostrará a continuación.

La condición límite para que el proceso de ganancia ocurra requiere que la cantidad de fotones generados por el proceso no lineal sea igual al número de fotones perdidos por disipación en el material y en los espejos reflectores de la cavidad resonante. es decir, que las pérdidas de el rayo de luz señal y la del "ocioso" en el interior de la cavidad sean iguales a la ganancia por el proceso de amplificación paramétrica. Lo anterior se puede expresar de la siguiente forma:

$$\frac{dA_1}{dz} = \frac{dA_2}{dz} = 0 \quad (\text{A.24})$$

A partir de esta relación y haciendo uso de las ecuaciones (A.17) y (A.18) se obtiene los siguiente:

$$-\frac{\alpha_1}{2} A_1 - i \frac{g}{2} A_2 = 0 \quad (\text{A.26})$$

y

$$i \frac{g}{2} A_1 - \frac{\alpha_2}{2} A_2 = 0 \quad (\text{A.27})$$

Para que existan soluciones no triviales de la ecuación (A.27) se debe satisfacer la relación:

$$g_u^2 = \alpha_1 \alpha_2 = \sigma_1 \sigma_2 \frac{\mu_0^2}{\epsilon_1 \epsilon_2} \quad (\text{A.28})$$

El subíndice u se refiere al valor umbral.

Nótese que g está relacionada a la intensidad del haz de bombeo por medio de (A.19) por lo que la anterior condición establece un el valor umbral en la intensidad del haz de bombeo para que el proceso de ganancia se haga evidente. si se conocen los valores de σ_1 y de ϵ_1 para el cristal que interesa, entonces se puede tener una estimación de la potencia umbral que se requiere del láser de bombeo. Esta condición es característica de este tipo de sistemas.

En el MOPO se necesita un mínimo de 500 mJ pulsados a 8 ns en un área de 5 mm para que el proceso ocurra. Por otra parte la alineación entre el haz de bombeo y el eje de la cavidad osciladora en donde se encuentra el cristal es sumamente crítica, pues de otra manera la relación de ajuste de fase (A.19) no se satisface para ninguna frecuencia.

A.5 Proceso de sintonía dependiente del ángulo

Se ha visto que las ondas que se involucran en el proceso de oscilación paramétrica obedecen la condición de ajuste de fases (ec. A.20a), que es una forma distinta de expresar la conservación del momentum lineal p en el proceso (pues $hk=P$, con P el momentum lineal de un fotón) y que puede ser reescrita, multiplicando por c y dividiendo por h como:

$$W_3 n_3 = W_2 n_2 + W_3 n_3 \quad (\text{A.29})$$

De esta manera, si se desea que el proceso sea eficiente, se tiene que encontrar la forma de que el producto del índice de refracción por la frecuencia de la onda a iguale la suma de los respectivos productos de la onda 1 y 2. En un material ordinario lo anterior no se puede llevar a cabo debido a las relaciones de dispersión, que establecen que el índice de refracción es función de la frecuencia y por lo tanto limitan la posibilidad de variar aquel sin modificar a ésta. Sin embargo, para un tipo muy particular de cristales, llamados birrefringentes, es posible encontrar orientaciones particulares para las cuales el índice de refracción de un onda sea igual al de otra con frecuencia distinta, o ajustar relaciones del tipo expresado en (A.29). El proceso de

sintonía en frecuencia que se lleva a cabo en el sistema (MOPO) se basa precisamente en la variación del ángulo del cristal, por medio de la cual la condición de ajuste de fases se modifica según la onda que se quiera usar. En la siguiente sección se presenta una relación que sirve para conocer la dependencia de el ángulo y la variación de la frecuencia, apoyados en (A.29).

Entre los resultados generales que se obtienen para la propagación de ondas polarizadas en medios anisotrópicos se puede ver que, dentro de un cristal birrefringente, existen dos tipos de rayos, a saber: los ordinarios, cuyo índice de refracción no depende del ángulo de orientación entre el cristal y el rayo y los extraordinarios, en los que sí depende. El tratamiento de la propagación de ondas polarizadas a través de un cristal anisotrópico es un tema muy extenso, y no se trata en esta tesis, pero los conceptos y resultados más importantes se pueden encontrar en las referencias [a.8] y [a.9].

Un esquema muy usado en la construcción de fuentes entonables de conversión no lineal es aquel en el cual la onda de bombeo (onda a) es un rayo extraordinario, mientras que la onda señal (onda 1) y la ociosa (onda 2) son rayos ordinarios. De esta manera, la condición sobre los índices de refracción presentada en (A.29) se puede satisfacer buscando el ángulo particular para el cual el término derecho iguale al izquierdo en tal expresión. Si se supone que tal ángulo se conoce entonces a partir de esto se puede hacer un análisis directo para encontrar, dado un cambio en el ángulo, el nuevo par de frecuencias que cumplirán con (A.29).

Para un ángulo particular θ_0 , la condición antes mencionada se puede describir de la siguiente manera:

$$w_3 n_{30}(\theta_0) = w_{10} n_{10} + w_{20} n_{20} \quad (\text{A.30a})$$

En esta notación se hace resaltar la dependencia del índice de refracción respecto a la frecuencia para el rayo de bombeo. El subíndice "o" indica que los valores corresponden a las frecuencias iniciales.

Si se rota el cristal un ángulo $\Delta\theta$, el índice n , cambiará y, por lo tanto, w , y W , deberán cambiar a fin de que la relación (A.29) se siga manteniendo. El proceso de conversión de frecuencia tiene lugar con los siguientes cambios relativos en frecuencia e índices de refracción respecto a los valores correspondientes al ángulo θ_0 :

$$w_3 \rightarrow w_3 \quad (\text{la frecuencia de bombeo no cambia})$$

$$n_{10} \rightarrow n_{10} + \Delta n_1$$

$$w_{i0} \rightarrow w_{i0} + \Delta w_i$$

$$\Delta w_2 = -\Delta w_1$$

(A.30b)

donde i vale para 1 y 2 y las nuevas frecuencias que satisfacen el ajuste de fase ya no tienen el subíndice o .

entonces, una vez cambiado el ángulo de orientación del cristal, la ecuación (A.30a) se convierte en la siguiente:

$$w_3(n_{30} + \Delta n_3) = (w_{10} + \Delta w_1)(n_{10} + \Delta n_1) + (w_{20} + \Delta w_2)(n_{20} + \Delta n_2)$$

(A.30c)

Despreciando términos de segundo orden ($\Delta w \Delta n$) y usando el hecho de que $w_3 = w_2 + w_1$ se tiene entonces que:

$$\Delta w_1 \Big|_{\theta_0} = \frac{w_3 \Delta n_3 - w_{10} \Delta n_1 - w_{20} \Delta n_2}{n_{10} - n_{20}}$$

(A.31)

Donde:

$$\Delta n_i = \frac{\partial n_i}{\partial w} \Big|_{w_{i0}} \Delta w_i$$

(A.31a)

con $i=1, 2$. Y, además:

$$\Delta n_3 = \frac{\partial n_3}{\partial \theta} \Big|_{\theta_0} \Delta \theta$$

(A.31b)

sustituyendo estas dos últimas expresiones en (A.31):

$$\frac{\partial w_1}{\partial \theta} = \frac{w_3 \frac{\partial n_3}{\partial \theta}}{(n_{10} - n_{20}) + [w_{10} \left(\frac{\partial n_1}{\partial w} \right) - w_{20} \left(\frac{\partial n_2}{\partial w} \right)]}$$

(A.32)

Por otro lado puede mostrarse [a.1] que la dependencia en θ para el índice de refracción de una onda extraordinaria está dado por:

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2\theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e^2} \quad (\text{A.32a})$$

Si se despeja el valor de n_e y se realiza la derivada parcial correspondiente y recordando que n_e es la onda extraordinaria en el cristal, se obtiene, finalmente:

$$\frac{\partial w_1}{\partial \theta} = \frac{-\frac{1}{2} w_3 n_{30}^3 \left[\left(\frac{1}{n_3} \right)^2 - \left(\frac{i}{n_o} \right)^2 \right] \sin(2\theta)}{(n_{10} - n_{20}) + (w_{10} \frac{\partial n_1}{\partial w} - w_{20} \frac{\partial n_2}{\partial w})} \quad (\text{A.33})$$

Donde se ha denotado como n_{-1} y n_{-2} a las ondas extraordinaria y ordinaria correspondientes a la frecuencia w_3 , respectivamente.

Con la fórmula (A.33) se concluye este apéndice.

Referencias del Capítulo III

- [a.1] Yariv, A., *Quantum Electronics*, second Ed. Wiley, New York, (1967) capítulos 5, 16 y 17.
- [a.2] Mills, D.L., *Nonlinear Optics*, Basic concepts, Springer Verlag, New York, 1991
- [a.3] Levenson Marc D., Kano S., *Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy*, Revised ed. (Academic Press, INC, San Diego C.A., 1988)
- [a.4] Baldwin George C. *An Introduction to Nonlinear Optics*, third Ed. Plenum Press, New York, 1975.
- [a.5] Svelto Orazio, Hanna D.C., *principles of lasers*, second Ed., (Plenum press, London, 1982) capítulo 8.
- [a.6] Manley, J. M. and H.E., Rowe, *General energy relations in nonlinear reactances*, Proc. IRE, 47, 2115 (1959).

- [a.7] Saleh B, Teich M. *Fundamental of photonics* , Wiley Interscience, Cap. 18, (1991)
- [a.8] Yariv, A. and W.H. Louisell, *Theory of the optical parametric oscillator*, IEEE J. Quantum Electron., QE-2. 418 (1966)
- [a.9] Hecht E., Zajak A. *optics*, (Addison-Wesley Publishing Co. Massachusetts, 1974),Capitulo 8, p.244