

UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO PROGRAMA DE POSGRADO EN CIENCIAS (FÍSICA) Instituto de Física

Dinámica de la interacción electromagnética en un gas atómico en configuración diamante

PARA OPTAR POR EL GRADO DE: MAESTRO EN CIENCIAS (FÍSICA)

PRESENTA

Leonardo Andrés Castro Enríquez, Fís.

TUTORA

Dra. Rocío Jáuregui Reanud, Instituto de Física, UNAM

Ciudad Universitaria, Diciembre 2016.



Universidad Nacional Autónoma de México



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.

A mi padre, a quien debo el don de la perseverancia

Agradecimientos

A México, en particular Ciudad de México. A la Universidad Nacional Autónoma de México, el Instituto de Física, el Departamento de Física Teórica, el Comité Académico del Posgrado en Ciencias (Física), la Facultad de Ciencias, el Instituto de Ciencias Nucleares, el Instituto de Investigaciones en Matemáticas Aplicadas y en Sistemas, el Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACyT), el Sistema Nacional de Investigadores (SNI) y el proyecto PAPIIT con número IA103216 por el apoyo otorgado.

Un especial agradecimiento a mi tutora Dra. Rocío Jáuregui Reanud, su guía fue el pilar fundamental para el desarrollo de éste trabajo y mi formación académica durante la maestría. Agradezco a los demás miembros del comité tutor Dr. Pablo Barberis Blonstein y Dr. Carlos Villareal Luján. De igual manera a todas las personas que de alguna forma me colaboraron durante mi estancia en México, principalmente a los doctores Daniel Sahagún Sánchez y Jorge Amin Seman Harutinian.

Finalmente, deseo expresar mi más emotivo sentimiento de gratitud hacía mi madre María Amparo Enríquez Insuasti y mi padre Alexander José Castro Monterrosa por su apoyo incondicional a pesar de la distancia.

Leonardo Andrés Castro Enríquez

Resumen

En este trabajo se estudia la dinámica de un vapor de rubidio 85 (⁸⁵Rb) calentado en una celda a 100°C sobre el que inciden tres láseres con estructura de ondas planas. Para llevar a cabo este estudio, el modelo teórico implementado consiste en un sistema atómico de cuatro niveles en configuración diamante interactuando con dichos láseres en donde cada uno de estos se acoplan a tres pares de niveles de transición atómica con frecuencia específica. Como resultado de esta interacción, se genera un cuarto haz de luz denominado "señal" cuyas propiedades han llamado la atención de la comunidad científica recientemente; este fenómeno óptico no lineal es conocido en la literatura como mezclado de cuatro ondas (4WM o FWM por sus siglas en inglés).

Formalmente, el estudio de la dinámica del sistema se describe usando la ecuación maestra de Lindblad la que, bajo algunas aproximaciones, provee las ecuaciones ópticas de Bloch correspondientes a las componentes del operador densidad denominadas poblaciones y coherencias en las cuales se encuentra contenida la información del sistema. Permitiendo de esta manera, caracterizar al susodicho en términos de parámetros físicos medibles o controlables en un laboratorio tales como: la polarización, la susceptibilidad eléctrica, entre otros. El objetivo principal de este trabajo es entender los procesos ópticos no lineales producto del 4WM en este tipo de sistemas atómicos en configuración diamante.

Índice general

1.	Introducción				
	1.1.	Reseña	a histórica	2	
	1.2.	Mezcla	ado de cuatro ondas	3	
2.	Procesos ópticos no lineales				
	2.1.	Descri	pción general	5	
	2.2.	Ejemplos de procesos ópticos no lineales			
		2.2.1.	Generación del segundo armónico	7	
		2.2.2.	Generación de suma y diferencia de frecuencias	8	
		2.2.3.	Oscilación paramétrica	11	
		2.2.4.	Procesos ópticos no lineales a tercer orden	12	
3.	No linealidad en gases atómicos				
	3.1.	Teoría	del sistema de tres niveles	13	
		3.1.1.	Atrapamiento de población coherente (CPT)	14	
		3.1.2.	Transparencia inducida electromagnéticamente (EIT) \ldots	16	
	3.2.	Suscep	tibilidad no lineal a tercer orden	19	
		3.2.1.	Ensanchamiento Doppler y colisiones de desfase	22	
	3.3.	Teoría	del sistema de cuatro niveles	25	
		3.3.1.	Conversión de frecuencia mejorada	25	
		3.3.2.	Mezclado de cuatro ondas en un sistema doble lambda $\ .\ .\ .\ .$.	29	
4.	Ecuación maestra de Lindblad				
	4.1.	ción de la ecuación maestra general	32		

ÍNDICE GENERAL

	4.2.	Derivación de la ecuación maestra de Lindblad considerando un reservorio de modos radiativos	38			
5.	Dinámica de la interacción electromagnética en un vapor de rubidio					
	5.1.	Condiciones experimentales				
	5.2.	Modelo teórico	43			
		5.2.1. Hamiltoniano del sistema	43			
		5.2.2. Ecuaciones ópticas de Bloch	46			
		5.2.3. Efecto Doppler	49			
		5.2.4. Polarización no lineal	49			
	5.3.	Parámetros físicos	50			
6.	Res	Resultados, conclusiones y perspectivas				
	6.1.	Análisis de resultados	54			
		6.1.1. Poblaciones	54			
		6.1.2. Coherencias	58			
		6.1.3. Polarizaciones	65			
		6.1.4. Campos eléctricos	68			
	6.2.	Conclusiones	69			
	6.3.	Perspectivas	69			
A.	Derivación de las ecuaciones ópticas de Bloch					
	A.1.	Poblaciones	70			
	A.2.	Coherencias	73			
	A.3.	Estado estacionario	75			
	A.4.	Partes real e imaginaria	76			
в.	Propiedades del Rubidio					
	B.1.	Rubidio 85	81			
Bi	Bibliografía					

1

Capítulo 1

Introducción

1.1. Reseña histórica

Los avances en la óptica han surgido con frecuencia gracias al desarrollo de nuevos materiales cuyas propiedades ópticas se han ido optimizando cada vez más con el paso del tiempo. En primera instancia, la introducción de nuevos cristales ópticos en las décadas de 1970 y 1980 conllevaron a un incremento esencial en la eficiencia de conversión óptica no lineal al ultravioleta (UV). Además, el uso de cristales polarizados periódicamente permiten altas coincidencias de fase lo que genera un gran aumento eficiente en el mezclado de ondas no lineal. Sin embargo, los estudios se han extendido a medios gaseosos moleculares y atómicos en los que se han visto cambios significativos en sus propiedades ópticas mediante un tratamiento físico denominado preparación coherente [1].

La causa de la modificación sobre la respuesta óptica de un medio atómico se debe al carácter coherente de los estados atómicos inducido por un láser lo cual, produce interferencia cuántica entre los caminos de excitación que controlan dicha respuesta óptica. Como consecuencia es posible manipular la tasa de absorción y la refracción efectiva, dadas ambas en términos de la susceptibilidad lineal. En el caso en que esta absorción sea eliminada para la frecuencia resonante de una transición atómica a este fenómeno físico se le denomina transparencia inducida electromagnéticamente (EIT), término introducido por Harris y sus colegas en 1990 [2]. La importancia de la EIT radica en que, además de lo mencionado anteriormente, ésta tiene asociada una susceptibilidad no lineal aumentada en la región espectral de la transparencia inducida en el medio. Algunos trabajos pioneros sobre el tema se encuentran en [3,4], mientras que trabajos posteriores sobre aspectos específicos de la EIT y sus aplicaciones se pueden consultar en [5–8]. Los estudios teóricos y experimentales sobre la modificación de las propiedades atómicas debida a interferencia cuántica se intensificaron desde finales de 1990 [9]. Ya en 1976 Alzetta había observado el fenómeno que posteriormente fue denominado atrapamiento de población coherente (CPT); fenómeno relacionado con la EIT. En el experimento realizado por Alzetta et al [10], se aplicó un campo magnético inhomogeneo a una celda con átomos de sodio, mostrando un efecto de fluorescencia. La descripción teórica

de este fenómeno fue presentada por Arimondo y Orriols [11], al mismo tiempo pero independientemente de Whitley y Stroud Jr. [12], en donde el modelo teórico utilizado fue CPT en un sistema de tres niveles en configuración cascada. Estos estudios permitieron concluir que CPT es un efecto de fluorescencia en que se observa una interferencia destructiva dependiente de la posición ya que en algunas regiones se entra en resonancia con el campo magnético.

1.2. Mezclado de cuatro ondas.

El mezclado de cuatro ondas (4WM) es un fenómeno asociado a óptica no lineal de un medio con susceptibilidad dieléctrica de orden tres. En él participan cuatro modos del campo electromagnético acoplados cuyas propiedades básicas quedan determinadas por las llamadas relaciones de empatamiento de fase que a grandes razgos corresponden a la conservación de momento y energía en el proceso. Además, el 4WM en vapores atómicos ha sido ampliamente explorado en el pasado utilizando sistemas de tres y cuatro niveles atómicos, el cual se beneficia de la coherencia entre los estados estables más bajos. Trabajos pioneros en este campo reportaron aspectos básicos sobre procesos ópticos no lineales [13], generación de luz comprimida [14], generación de haces de luz gemelos multimodales comprimidos con aplicaciones a la imagenología cuántica [15,16] y la posible implementación de procesos de comunicación cuántica a grandes distancias incluyendo el almacenamiento y recuperación de qubits [17,18]. En este trabajo se considera un sistema atómico en configuración diamante (figura 5.2), conformado por un estado base estable, dos estados intermedios y un estado superior, acoplados en pares por tres láseres incidentes [19]. Cabe resaltar que algunos trabajos de investigación recientes han mostrado que esta estructura de niveles provee un comportamiento interesante sobre la propagación sensible a la fase [20], demostrando también que se pueden generar pares de fotones con polarización entrelazada tanto para ensambles atómicos frios [21] como para ensambles a altas temperaturas [22].

Esta tesis tiene como propósito describir la dinámica de un sistema atómico de cuatro niveles en configuración diamante interactúando con tres haces incidentes generando un cuarto haz como resultado de dicha interacción. Esta elección se hizo tomando en cuenta que el Laboratorio de Átomos Fríos y Óptica Cuántica (LaFriOc) del Instituto de Física está trabajando en la generación y caracterización de luz con correlaciones cuánticas precisamente utilizando 4WM en vapores de Rubidio en dicha configuración [23]. Los resultados son comparados con los obtenidos por Orozco *et al* [19] quien eligió los niveles para que las frecuencias de los fotones emitidos correspondieran a longitudes de londa en el rango de las telecomunicaciones dando pie a posibles aplicaciones en protocolos de comunicación cuántica [21]. En el caso del LaFriOc el interés está en que los fotones emitidos interactúen fuertemente con un gas atómico confinado en una trampa dipolar.

La tesis está escrita en el siguiente orden: En el capítulo 2 se realiza una descripción general de los procesos ópticos no lineales mencionando además algunos ejemplos de éstos, esto con el fin de introducir al lector en el campo de la óptica no lineal considerado en éste trabajo. En el capítulo 3 se describen algunos sistemas atómicos de pocos niveles interactúando con

haces de luz (en particular tres y cuatro niveles) en diferentes configuraciones incluyendo la teoría física subyacente y algunos fenómenos presentes en dichos sistemas (tales como el ensanchamiento Doppler y el desfasamiento por colisiones), dando pie a la teoría desarrollada posteriormente para el sistema de cuatro niveles en configuración diamante. En el capítulo 4 se deriva la ecuación maestra de Lindblad considerando un reservorio de modos radiativos, ya que dicha ecuación se utilizara más adelante para describir la dinámica del sistema atómico de cuatro niveles interactúando con los haces de luz el cual pierde energía mediante emisión espontánea. En el capítulo 5 se deriva el hamiltoniano del sistema físico bajo estudio en este trabajo y las ecuaciones ópticas de Bloch que describen la dinámica de dicho sistema teniendo en cuenta las condiciones teóricas y experimentales de la referencia [19]. Finalmente, en el capítulo 6 se realiza un breve análisis de resultados incluyendo las conclusiones y perspectivas.

Capítulo 2

Procesos ópticos no lineales

En este capítulo se realiza una descripción general sobre los procesos ópticos no lineales (sección 2.1) y se dan algunos ejemplos de los mismos (sección 2.2) con el fin de introducir al lector en el campo de la óptica no lineal el cual es considerado en el desarrollo de éste trabajo.

2.1. Descripción general

La óptica no lineal es el estudio de los fenómenos que surgen como una consecuencia de la modificación de las propiedades ópticas de un material en presencia de luz. Como es bien sabido, sólo la luz láser es lo suficientemente intensa para modificar las propiedades ópticas de dicho material.

El origen de la óptica no lineal se remonta al año 1961 con el descubrimiento de la generación del segundo armónico por Franken *et al.* [24], poco después de la demostración del primer trabajo de Maiman sobre el láser realizado en 1960 [25]. Sin embargo, cabe mencionar que se observaron algunos efectos no lineales antes de la invención del láser como por ejemplo los efectos de saturación en la luminiscencia de moleculas de colorante reportados por G. N. Lewis *et al.* en 1941 [26]. Por otro lado, se entiende a los fenómenos ópticos no lineales en el sentido en que éstos ocurren cuando la respuesta del material a un campo óptico incidente depende de una manera no lineal de la potencia de dicho campo. Por ejemplo, la generación del segundo armónico se da como un resultado de la parte de la respuesta atómica que escala cuadráticamente con la potencia del campo aplicado. Consecuentemente, la intensidad de la luz generada en la frecuencia del segundo armónico tiende a incrementar como el cuadrado de la intensidad del láser aplicado.

Con el fin de describir de una manera más precisa la óptica no lineal, consideremos como el momento dipolar por unidad de volumen o polarización $P(\omega)$ de un material depende de la potencia de un campo aplicado $E(\omega)$. En el caso de la óptica lineal, la polarización inducida depende linealmente de la potencia del campo eléctrico de modo que puede ser descrito mediante la ecuación

$$P_i(\omega) = \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j(\omega) \hat{e}_j, \qquad (2.1)$$

donde el tensor de segundo orden $\chi_{ij}^{(1)}$ se conoce como susceptibilidad lineal ϵ_0 es la permitividad del vacío y \hat{e}_j es el vector unitario asociado al campo eléctrico. No obstante, la respuesta óptica en los procesos no lineales se describe expresando la polarización $P(\omega)$ en series de potencias de $E(\omega)$ como sigue

$$P(\omega) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E(\omega) + \chi^{(2)} E^2(\omega) + \chi^{(3)} E^3(\omega) + \dots]$$

$$\equiv P^{(1)}(\omega) + P^{(2)}(\omega) + P^{(3)}(\omega) + \dots \qquad (2.2)$$

Las cantidades $\chi^{(2)}$ y $\chi^{(3)}$ se conocen como susceptibilidades ópticas no lineales de segundo y tercer orden respectivamente. Por simplicidad, $P(\omega)$ y $E(\omega)$ se tomaron como escalares ya que al considerar su naturaleza vectorial, las susceptibilidades se convierten en tensores de diversos órdenes como sigue

$$P_i^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega) E_k(\omega) \hat{e}_{jk},$$

$$P_i^{(3)}(\omega) = \epsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j(\omega) E_k(\omega) E_l(\omega) \hat{e}_{jkl}.$$
(2.3)

En las ecuaciones (2.1) y (2.2) se tuvo en cuenta que la velocidad de la luz es finita por lo que la polarización y el campo eléctrico tienen respuestas diferentes a frecuencias diferentes. Cabe mencionar además que las susceptibilidades también dependen de dichas frecuencias. Nos referiremos a $P^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(\omega)$ como la polarización no lineal a segundo orden y a $P^{(3)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3(\omega)$ como la polarización no lineal a tercer orden.

Existen procesos físicos en los que las interacciones ópticas no lineales están presentes en medios centro simétricos, es decir, que poseen simetría de inversión. Por consiguiente, ya que algunos cristales y diversos materiales tienen simetría de inversión, se tiene que $\chi^{(2)} = 0$ de modo que no hay interacciones ópticas no lineales a segundo orden para dichos medios. Por otro lado, las interacciones ópticas no lineales a tercer orden (es decir, aquellas descritas por una susceptibilidad $\chi^{(3)}$) pueden darse en medios centro simétricos y no centro simétricos. El procedimiento más usual para describir fenómenos ópticos no lineales se basa en expresar la polarización $P(\omega)$ en términos de la potencia del campo eléctrico aplicado $E(\omega)$, como se hizo en la ecuación (2.2). La razón por la cual la polarización juega un papel importante en la descripción de los fenómenos ópticos no lineales se debe a que cuando dicha polarización cambia en el tiempo ésta actúa como una fuente de nuevas componentes del campo electromagnético. Por ejemplo, teniendo en cuenta la ecuación de onda monocromática en un medio

óptico no lineal de la forma

$$\nabla^2 E - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial \omega^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P^{NL}}{\partial \omega^2},\tag{2.4}$$

con n el índice de refracción lineal y c la velocidad de la luz, podemos interpretar esta expresión como una ecuación de onda inhomogenea donde la polarización P^{NL} asociada a la respuesta no lineal impulsa el campo eléctrico E, y ya que $\partial^2 P^{NL}/\partial\omega^2$ es una medida de la aceleración de las cargas que conforman el medio, entonces la ecuación (2.4) es consistente con el teorema de Larmor del electromagnetismo el cual establece que cargas aceleradas generan radiación electromagnética.

Nótese que la expansión en series de potencias expresada en la ecuación (2.2) no necesariamente converge de modo que no es una ecuación del todo válida, como ocurre en el caso de la excitación resonante de un sistema atómico, en donde una fracción considerable de átomos se remueve del estado base o inclusive fuera de la resonancia, dicha ecuación pierde validez cuando la potencia del láser aplicado es comparable a la potencia del campo atómico característica E_{at} debido a que puede haber una fuerte fotoionización bajo estas condiciones [27].

2.2. Ejemplos de procesos ópticos no lineales

En esta sección se describe de manera general el concepto de proceso óptico no lineal incluyendo algunos ejemplos de dicho proceso.

2.2.1. Generación del segundo armónico

Como un ejemplo de una interacción óptica no lineal, consideremos el proceso de la generación del segundo armónico ilustrado en la figura esquemática (2.1) Consideramos un haz cuyo



Figura 2.1: (a) Geometría de la generación del segundo armónico. (b) Diagrama de niveles de energía que describe la generación del segundo armónico [27].

campo eléctrico se escribe como

$$\mathbf{E}(\omega) = Ee^{-i\omega t} + \text{c.c.} \tag{2.5}$$

incide sobre un cristal para el que la susceptibilidad a segundo orden es distinta de cero. La polarización no lineal creada en dicho cristal está dada de acuerdo a la ecuación (2.2) por

 $P^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}^2(\omega)$ o de manera explícita como

$$P^{(2)}(\omega) = 2\epsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E} \mathbf{E}^* + (\epsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}^2 e^{-i2\omega t} + \text{c.c}).$$
(2.6)

Vemos que la polarización a segundo orden se compone de una contribución en una frecuencia cero (primer término) y una contribución a una frecuencia 2ω (segundo término). De acuerdo a la ecuación de onda (2.4), esta contribución 2ω puede conllevar a la generación de radiación en la frecuencia del segundo armónico. Nótese que la primer contribución en (2.6) no conlleva a la generación de radiación electromagnética (ya que su segunda derivada temporal es cero); esta contribución genera un proceso conocido como *rectificación óptica*, en el cual un campo eléctrico estático es creado a lo largo del cristal no lineal.

Bajo condiciones experimentales apropiadas, el proceso de la generación del segundo armónico puede ser tan eficiente que casi toda la potencia del haz incidente de frecuencia ω es convertido en radiación en la frecuencia del segundo armónico 2ω . Una aplicación común de este proceso es convertir la salida de un láser de frecuencia fija a una región espectral diferente. Por ejemplo, el láser Nd:YAG opera cerca al infrarrojo a una longitud de onda de 1,06 μm . Mediante la generación del segundo armónico el haz producido por el láser es convertido a radiación de 0,53 μm de longitud de onda, en el medio del espectro visible.

Esquemáticamente, la generación del segundo armónico se puede visualizar considerando la interacción en términos del intercambio de fotones entre las diversas componentes de la frecuencia del campo (ver figura 2.1). De esta manera, dos fotones de frecuencia ω son destruidos y un fotón de frecuencia 2ω es creado simultáneamente en un proceso cuántico simple. La línea sólida en la figura representa el estado base atómico y las líneas punteadas lo que se conocen como niveles virtuales. Éstos niveles no son niveles de energía reales del átomo libre pero representan la energía combinada de uno de los eigenestados de energía del átomo y de uno o más fotones del campo de radiación [27].

2.2.2. Generación de suma y diferencia de frecuencias

Consideremos el caso en el que el campo incidente sobre un medio óptico no lineal de segundo orden consiste de dos componentes diferentes de frecuencia, representado en la forma

$$\mathbf{E}(\omega) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.}$$
(2.7)

Suponiendo como en la ecuación (2.2) que la contribución de segundo orden a la polarización no lineal está dada por

$$P^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}(\omega)^2, \qquad (2.8)$$

obtenemos que la polarización no lineal es de la forma

$$P^{(2)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)} [E_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + E_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + 2E_1 E_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + \text{c.c}] + 2\epsilon_0 [E_1 E_1^* + E_2 E_2^*].$$
(2.9)

Es conveniente expresar este resultado usando la notación

$$P^{(2)}(\omega) = \sum_{n} P(\omega_n) e^{-i\omega_n t},$$
(2.10)

donde la suma se hace sobre las frecuencias ω_n positivas y negativas. Por consiguiente, las amplitudes complejas de las diversas componentes de la frecuencia de la polarización no lineal están dadas por

$$P(2\omega_{1}) = \epsilon_{0}\chi^{(2)}E_{1}^{2} \text{ (GSA)},$$

$$P(2\omega_{2}) = \epsilon_{0}\chi^{(2)}E_{2}^{2} \text{ (GSA)},$$

$$P(\omega_{1} + \omega_{2}) = 2\epsilon_{0}\chi^{(2)}E_{1}E_{2} \text{ (GSF)},$$

$$P(\omega_{1} - \omega_{2}) = 2\epsilon_{0}\chi^{(2)}E_{1}E_{2}^{*} \text{ (GDF)},$$

$$P(0) = 2\epsilon_{0}\chi^{(2)}(E_{1}E_{1}^{*} + E_{2}E_{2}^{*}) \text{ (RO)}.$$

$$(2.11)$$

Cada una de las ecuaciones en (2.11) se ha etiquetado con el nombre del proceso físico que esta describe: (GSA) generación del segundo armónico, (GSF) generación de suma de frecuencias, (GDF) generación de diferencia de frecuencias y (RO) rectificación óptica. Nótese que, de acuerdo a la notación compleja utilizada, existe también una respuesta negativa en cada una de las frecuencias diferentes de cero,

$$P(-2\omega_{1}) = \epsilon_{0}\chi^{(2)}E_{1}^{*2},$$

$$P(-2\omega_{2}) = \epsilon_{0}\chi^{(2)}E_{2}^{*2},$$

$$P(-\omega_{1} - \omega_{2}) = 2\epsilon_{0}\chi^{(2)}E_{1}^{*}E_{2}^{*},$$

$$P(\omega_{2} - \omega_{1}) = 2\epsilon_{0}\chi^{(2)}E_{2}E_{1}^{*}.$$
(2.12)

Sin embargo, ya que estas cantidades son el conjugado complejo de las cantidades en (2.11) podemos omitirlas. De (2.11) vemos que cuatro componentes de la frecuencia diferentes de cero hacen parte de la polarización no lineal. No obstante, es común que más de una de dichas componentes estén presentes con una intensidad poco apreciable en la radiación generada por la interacción óptica no lineal. Esto se debe a que la polarización no lineal solo puede producir de manera eficiente una señal de salida si se cumple la *condición de empatamiento de fase* (la cual se discutirá más adelante). Operacionalmente, uno puede escoger qué componente de la frecuencia será radiada mediante una selección apropiada de la polarización de la radiación incidente y la orientación del cristal no lineal [27].

Consideremos el proceso de **generación de suma de frecuencias** ilustrado en la figura (2.2). De acuerdo con la ecuación (2.11), la amplitud compleja de la polarización no lineal que describe este proceso está dada por la expresión

$$P(\omega_1 + \omega_2) = 2\epsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2.$$
(2.13)



Figura 2.2: Generación de suma de frecuencias (a) Geometría de la interacción. (b) Diagrama de niveles [27].

El proceso de generación de suma de frecuencias es, de diversas maneras, análogo al de la generación del segundo armónico, excepto que en la suma de frecuencias las dos ondas incidentes tienen frecuencias diferentes. Una aplicación de la generación de suma de frecuencias es producir radiación sintonizable en la región espectral del ultravioleta seleccionando a una de las ondas incidentes como la salida de un láser visible de frecuencia fija y a la otra como la salida de un láser visible con frecuencia sintonizable [27].

Por otro lado, el proceso de **generación de diferencia de frecuencias** ilustrado en la figura (2.3), es descrito mediante una polarización de la forma

$$P(\omega_1 - \omega_2) = 2\epsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2^*.$$
(2.14)

En este caso la frecuencia de la luz generada es la diferencia de las frecuencias de los campos



Figura 2.3: Generación de diferencia de frecuencias (a) Geometría de la interacción. (b) Diagrama de niveles [27].

incidentes. Este proceso puede ser utilizado para producir radiación infrarroja sintonizable mezclando la salida de un láser visible de frecuencia sintonizable con uno de frecuencia fija. A grandes rasgos, la generación de suma y diferencia de frecuencias parecen procesos muy similares. Sin embargo, observando el diagrama de niveles en la figura (2.3 b), se puede apreciar una diferencia importante entre estos procesos ya que, la conservación de la energía requiere que para todo fotón que es creado en la diferencia de frecuencias $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$, un fotón en la frecuencia incidente más alta (ω_1) debe ser absorbido mientras que un fotón en la frecuencia incidente más baja (ω_2) debe ser generado. Por consiguiente, el campo incidente con frecuencia más baja es amplificado por la generación de diferencia de frecuencias, proceso conocido también como *amplificación paramétrica óptica* [28]. De acuerdo al diagrama de niveles, el átomo absorbe un fotón de frecuencia ω_1 y salta al nivel virtual más alto. Éste nivel decae mediante un proceso de emisión de dos fotones que es estimulado por la presencia del campo ω_2 que ya está presente. Cabe mencionar que la emisión de los dos fotones puede darse aún si el campo ω_2 no es aplicado. Los campos generados en este proceso son mucho más débiles pues éstos son creados mediante *emisión espontánea a dos fotones* de un nivel virtual. Este proceso se conoce como *fluorescencia parámetrica* [29].

2.2.3. Oscilación paramétrica

Hasta el momento sólo hemos visto que en el preeso de generación de diferencia de frecuencias, la presencia de radiación a una frecuencia ω_2 o ω_3 puede estimular la emisión de fotones adicionales en dichas frecuencias. Pero, si el cristal no lineal utilizado en este proceso es colocado dentro de un resonador óptico como se muestra en la figura (2.4), los campos generados con frecuencias ω_2 y ω_3 aumentan.



Figura 2.4: Oscilador paramétrico óptico. Las paredes de la cavidad son espejos con alta reflectividad en las frecuencias ω_2 y/o ω_3 . Además las frecuencias de salida se pueden sintonizar mediante la orientación del cristal [27].

Un dispositivo de este tipo se conoce como oscilador paramétrico óptico. Los osciladores paramétricos ópticos son usados con frecuencia en longitudes de onda del infrarrojo, donde otras fuentes de radiación sintonizable no están disponibles fácilmente. La sintonización de este dispositivo se debe a que cualquier frecuencia ω_2 que sea más pequeña que ω_1 puede satisfacer la condición $\omega_2 + \omega_3 = \omega_1$ para alguna frecuencia ω_3 . En la práctica, uno controla la frecuencia de salida del oscilador paramétrico óptico ajustando la condición de empatamiento de fases. La frecuencia del campo aplicado ω_1 es llamada a veces frecuencia de bombeo, la frecuencia de salida deseada se denomina frecuencia de señal y la otra frecuencia de salida que no es de importancia es denominada frecuencia "idler".

2.2.4. Procesos ópticos no lineales a tercer orden

Teniendo en cuenta ahora la contribución a tercer orden de la polarización no lineal

$$P^{(3)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E}(\omega)^3.$$
(2.15)

Para el caso general en el que el campo $\mathbf{E}(\omega)$ se conforma de varias componentes de la frecuencia, la expresión para $P^{(3)}(\omega)$ es muy complicada. Por esta razón, consideramos el caso simple en el que el campo aplicado es monocromático

$$\mathbf{E}(\omega) = \varepsilon \cos(\omega t). \tag{2.16}$$

Utilizando la identidad $\cos^3(\omega t) = \frac{1}{4}\cos^3\omega t + \frac{3}{4}\cos\omega t$, podemos escribir la polarización no lineal como

$$P^{(3)}(\omega) = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} \varepsilon^3 \cos 3\omega t + \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} \varepsilon^3 \cos \omega t, \qquad (2.17)$$

donde el primer término en la ecuación (2.17) describe una respuesta óptica del medio a una frecuencia 3ω la cual es creada al aplicar un campo externo de frecuencia ω . Este término conlleva al proceso de generación del tercer armónico ilustrado en la figura (2.5). De acuerdo a la descripción esquemática de este proceso expuesta en la parte (b) de la figura, tres fotones de frecuencia ω son absorbidos y un fotón de frecuencia 3ω es creado [27].



Figura 2.5: Generación del tercer armónico. (a) Geometría de la interacción. (b) Diagrama de niveles.

Capítulo 3 No linealidad en gases atómicos

Como es bien sabido, los átomos presentan una enorme cantidad de niveles energéticos con los cuales la luz puede interactuar e inducir transiciones. Sin embargo, es posible acotar esta cantidad enorme de niveles a aquellos que son los más relevantes. Esto permite simplificar los modelos teóricos en el estudio de este tipo de sistemas lo que conlleva a una mejor comprensión de los procesos ópticos no lineales observados. Ya que en este trabajo se estudia un sistema atómico de cuatro niveles, es pertinente realizar una introducción sobre algunos de los modelos teóricos que se han aplicado a sistemas de niveles reducidos y los procesos no lineales que se han predicho en éstos.

3.1. Teoría del sistema de tres niveles

Los aspectos más importantes de la transparencia inducida electromagneticamente (EIT) y otros fenónemos de coherencia atómica tales como el atrapamiento de población coherente (CPT) [12, 30–32] y la transferencia adiabática de población [33–36] pueden ser descritos con modelos de sistemas atómicos de tres niveles. Para ellos las reglas de selección dipolar requieren normalmente que dos pares de niveles esten acoplados mientras que la transición entre el tercer par está prohibida. En la figura 3.1 se muestran tres esquemas básicos de un sistema de tres niveles en diferentes configuraciones, en donde las transiciones $|2\rangle - |1\rangle$ y $|3\rangle - |1\rangle$ están permitidas mientras que la transición $|2\rangle - |3\rangle$ está prohibida. La clasificación de los tres esquemas depende de las energías relativas correspondientes a los tres niveles [37]: (a) en un esquema Λ se tiene que $E_2 < E_3 < E_1$, (b) en un esquema escalera (o cascada) se tiene que $E_2 < E_1 < E_3$ y (c) en un esquema V $E_1 < E_3 < E_2$. Por lo regular, en un esquema Λ o escalera el nivel $|2\rangle$ es el estado base del átomo y es donde la mayoría de la población se encuentra inicialmente. Además, la EIT es asociada a éstos esquemas debido a que no se requiere transferencia de población (en contraste con el CPT) entre los estados $|1\rangle$ y $|3\rangle$, los cuales pueden permanecer con poca población durante el proceso.



Figura 3.1: Esquemas de un átomo de tres niveles interactuando con dos campos electromagnéticos cercanos a la resonancia. En todos los casos $|2\rangle$ esta acoplado dipolarmente a $|1\rangle y |1\rangle a |3\rangle$. Pero $|3\rangle$ no está acoplado con $|2\rangle$.

3.1.1. Atrapamiento de población coherente (CPT)

Para entender de una manera más clara como los haces de luz interactúan con un átomo de tres niveles y crean superposiciones coherentes de sus estados, es necesario tener en cuenta CPT en un esquema Λ . Consideramos un sistema de tres niveles en configuración Λ acoplado a dos láseres con frecuencias angulares ω_1 y ω_2 cercanos a la resonancia con potencias definidas en términos de la frecuencias de Rabi Ω_{12} y Ω_{13} (ver figura 3.2) [37].



Figura 3.2: Esquema de un sistema de tres niveles Λ interactuando con dos láseres incidentes. En éste esquema en particular, se satisface la condición de resonancia a dos fotones para obtener atrapamiento de población coherente (CPT). Considerando además que las potencias de los láseres son comparables entre sí y son lo suficientemente fuertes por lo que pueden saturar la transición a dos fotones.

Definiendo las frecuencias de las transiciones entre estados atómicos como $\omega_{12} = (E_1 - E_2)/\hbar$, $\omega_{13} = (E_1 - E_3)/\hbar$ y $\omega_{32} = (E_3 - E_2)/\hbar$ procedemos a definir los desentonamientos a uno y dos fotones como $\Delta_{12} = \omega_{12} - \omega_1$ y $\Delta_{13} = \omega_{13} - \omega_2$. El hamiltoniano total del sistema H está dado en términos del hamiltoniano del átomo en reposo H_0 y las interacciones entre el átomo y los láseres incidentes $V_{ij} = \hbar \Omega_{ij}$ con j = 1, 2, 3, de la forma $H = H_0 + V_{12} + V_{13}$. Formalmente, el hamiltoniano se escribe como

$$H = \hbar\omega_1 |1\rangle \langle 1| + \hbar\omega_2 |2\rangle \langle 2| + \hbar\omega_3 |3\rangle \langle 3|$$

+ $\frac{\hbar}{2} \Omega_{21} e^{-i\omega_1 t} |2\rangle \langle 1| + \frac{\hbar}{2} \Omega_{12} e^{i\omega_1 t} |1\rangle \langle 2|$
+ $\frac{\hbar}{2} \Omega_{31} e^{-i\omega_2 t} |3\rangle \langle 1| + \frac{\hbar}{2} \Omega_{13} e^{i\omega_2 t} |1\rangle \langle 3|.$ (3.1)

Considerando resonancia a dos fotones, esto es $\Delta_{12} = \Delta_{13} = 0$, los tres eigenestados de H son

$$|C_1\rangle = \frac{1}{2} \left(-|1\rangle + \frac{\Omega_{12}}{\Omega} |2\rangle + \frac{\Omega_{13}}{\Omega} |3\rangle \right), \qquad (3.2)$$

$$|C_2\rangle = \frac{1}{2} \left(|1\rangle + \frac{\Omega_{12}}{\Omega} |2\rangle + \frac{\Omega_{13}}{\Omega} |3\rangle \right), \qquad (3.3)$$

$$|\mathrm{NC}\rangle = \frac{\Omega_{13}}{\Omega}|2\rangle - \frac{\Omega_{12}}{\Omega}|3\rangle.$$
 (3.4)

con $\Omega = (\Omega_1 + \Omega_2)^{1/2}$. Sumando las ecuaciones (3.2) y (3.3), obtenemos superposiciones coherentes simétrica y antisimétrica de los dos estados más bajos en la base del átomo sin perturbar de la forma

$$|\mathbf{C}\rangle = \frac{\Omega_{12}}{\Omega}|2\rangle + \frac{\Omega_{13}}{\Omega}|3\rangle. \tag{3.5}$$

De los eigenestados anteriores, se tiene que $|C\rangle$ se acopla al estado intermedio $|1\rangle$ mediante la interacción dipolar eléctrica mientras que el estado $|NC\rangle$ (denominado estado "oscuro") no se acopla con $|1\rangle$, lo cual se puede demostrar si construimos el momento dipolar entre $|C\rangle$ o $|NC\rangle$ y el estado $|1\rangle$, es decir, si se demuestra que $\langle 1|H|C\rangle \neq 0$ y $\langle 1|H|NC\rangle = 0$. El desarrollo anterior es un caso simplificado debido a la suposición de que los estados en las superposiciones (3.5) y (3.4) alcanzan un estado estacionario. Como consecuencia de esta suposición, el eigenestado $|NC\rangle$ adquiere toda la población del sistema mediante la acción del bombeo óptico. En otras palabras, la emisión espontánea de $|1\rangle$ transfiere la población a $|NC\rangle$ pero no existe un proceso de transferencia de población inverso de $|NC\rangle$ a $|1\rangle$.

El primer experimento con CPT fue realizado por Alzetta *et al* [10]; en éste experimento se aplicó un campo magnético inhomogeneo a lo largo del eje de una celda con átomos de sodio, mostrando un efecto de fluorescencia. Sin embargo, en ciertos puntos a lo largo de la celda se observaba interferencia destructiva, la cual se debía a que el CPT y el campo magnético entraban en resonancia en las regiones de dicha interferencia. La explicación teórica de éste fenómeno fue presentada por Arimondo y Orriols [11], al mismo tiempo pero independientemente de Whitley y Stroud Jr. [12], en donde el modelo teórico utilizado fue CPT en un esquema cascada.

El incremento en el interés sobre el CPT fue estimulado significativamente por sus aplicaciones en la metrología [38], ya que la implementación del CPT ha permitido construir relojes atómicos a escalas microscópicas [39–41]. Otra aplicación es la denominada velocidad selectiva del CPT (VSCPT), desarrollada por Aspect *et al.* [42] y que requiere de un sistema Λ conformado por dos estados base Zeeman degenerados interactuando con haces de luz polarizados perpendicularmente en contra propagación. La técnica consiste en que los átomos que no están inicialmente en un intervalo de velocidades adecuado para el estado oscuro, experimentan una redistribución del momento lineal debida al bombeo óptico seguido de una emisió espontánea, lo que los lleva al intervalo de velocidades adecuado para dicho estado oscuro [43].

3.1.2. Transparencia inducida electromagnéticamente (EIT)

En un esquema CPT es usual que las potencias de acoplamiento sean de magnitud comparable, de modo que los láseres son lo suficientemente fuertes para alcanzar la condición de saturación de una transición a dos fotones lo que conlleva además a efectos de interferencia en el sistema. Por otro lado, en éste tipo de esquemas no es necesario que se satisfaga la condición de saturación a un solo fotón en las transiciones $|2\rangle - |1\rangle y |3\rangle - |1\rangle$ ya que, bajo la condición de resonancia a dos fotones, el estado $|1\rangle$ puede ser omitido por lo que no es necesario considerarlo en el acoplamiento entre el átomo y los láseres.

Sin embargo, si suponemos que uno de los campos es mucho más intenso que el otro (por ejemplo $\Omega_{12} \ll \Omega_{13}$), entonces los únicos efectos de interferencia importantes serán los asociados a los procesos en los que la excitación se deba a Ω_{13} (ver figura 3.3); en donde cabe resaltar que esta situación física es la base fundamental de la transparencia inducida electromagnéticamente (EIT) la cual, como se ha mencionado en el transcurso de éste capítulo, está relacionada con el CPT. En un esquema CPT los estados $|2\rangle y |3\rangle$ son subniveles Zeeman o hiperfinos del estado base inicialmente poblados mientras que, en muchos esquemas EIT $|3\rangle$ es un estado excitado y no alberga población durante el proceso. Además, a diferencia del CPT donde la escala temporal del atrapamiento de población en el estado $|NC\rangle$ es de varios tiempos de vida radiativos, en la EIT dicho atrapamiento se da en un rango de tiempo del orden de $1/\Omega_2$ el cual en general es mucho más corto [44]. Comparando con los esquemas de transferencia de población adiabática coherente (por ejemplo el paso adiabático Raman estimulado (STIRAP)) también se ha observado que la EIT es equivalente a las etapas iniciales de éste proceso de transferencia adiabática cuando los pulsos láser satisfacen la condición $\Omega_{12} \ll \Omega_{13} [33, 34].$

La interferencia de la EIT surge debido a que la amplitud de transición entre $|2\rangle y |1\rangle$ incluye, además de un término correspondiente al campo resonante de potencia Ω_{12} , una amplitud adicional debida a la presencia del otro campo de potencia Ω_{13} . Por lo regular el estudio de éste tipo de sistemas con EIT se hace utilizando la base de los estados vestidos [45]. En el caso cuando $\Omega_{12} \ll \Omega_{13}$ (condición fundamental para obtener EIT) de las ecuaciones de los



Figura 3.3: Esquema de un sistema de tres niveles Λ con EIT. El campo que acopla a $|2\rangle$ con $|1\rangle$ se le conoce en la literatura como campo de prueba débil que en nuestro caso está asociado a la frecuencia de Rabi Ω_{12} , mientras que el campo que acopla los estados $|2\rangle$ y $|3\rangle$ es denominado campo de acoplamiento fuerte y esta relacionado con Ω_{13} .

estados acoplado y no acoplado, ecuaciones (3.5) y (3.4), se tiene que

$$|C\rangle = \frac{\Omega_{12}}{\Omega}|2\rangle + \frac{\Omega_{13}}{\Omega}|3\rangle \approx |3\rangle,$$
 (3.6)

$$|\mathrm{NC}\rangle = \frac{\Omega_{13}}{\Omega}|2\rangle - \frac{\Omega_{13}}{\Omega}|3\rangle \approx |2\rangle.$$
 (3.7)

Nótese que $|2\rangle$ es equivalente a $|NC\rangle$ de modo que (para una resonancia a dos fotones y un estado $|3\rangle$ metaestable) la absorción desaparece. Ésta cancelación de la absorción también puede darse en términos de la interferencia de Fano [46–48].

Alternativamente, si la EIT está dada en términos de la base de los estados propios del átomo sin interactuar, las coherencias son las cantidades indicadas para estudiar la interferencia las cuales, dentro de un marco semiclásico, están relacionadas con la oscilación de los dipolos eléctricos entre pares de estados atómicos $|i\rangle - |j\rangle$ debida a la excitación producida por los campos de acoplamiento aplicados. Por otro lado, la excitación fuerte de estos dipolos ocurre siempre que dichos campos aplicados estén cerca a la resonancia con la transición dipolar eléctrica entre ambos estados. De esta manera, si existen varios modos de excitar el dipolo oscilante asociado a la transición $|i\rangle - |j\rangle$, entonces es posible que la interferencia surja entre las diversas contribuciones para dicho dipolo y que al sumarlas se obtenga el momento dipolar eléctrico total de la transición [44]. Otros procesos análogos de ésta naturaleza son el efecto Fano de autoionización [49], la interferencia clásica en un plasma ideal [50] y los efectos debidos a un láser inducido en una estructura continua [51].

Como es bien sabido, en términos de la matriz de densidad las coherencias corresponden a los elementos de matriz fuera de la diagonal ρ_{ij} las cuales están formadas a partir de las combinaciones lineales de las amplitudes de probabilidad de los estados cuánticos las cuales juegan un papel importante en la evolución de un átomo acoplado a uno o varios campos

electromagnéticos, lo que ha conllevado a un incremento en la investigación sobre los efectos de la EIT en sistemas atómicos de tres niveles o más niveles utilizando el formalismo de la matriz densidad el cual, incluye además efectos de decoherencia debidos a, por ejemplo, emisión espontánea, ensanchamiento Doppler, etc. [52–57]. Sin embargo, aunque el tratamiento de la matriz densidad ha mostrado ser el más conveniente, existen otros enfoques alternativos llevados a cabo en términos de amplitudes de probabilidad [2,45,58], mediante un tratamiento cuidadoso de los diagramas de Feynman asociados a los procesos que proveen la interferencia [48] o utilizando la teoría del salto cuántico [59]. En todos los casos las predicciones son en esencia idénticas.

Las magnitudes de los elementos de matriz relevantes pueden calcularse a partir de ecuaciones de evolución tales como la ecuación maestra de Lindblad, de donde se obtiene que dichos elementos de matriz dependen de parámetros físicos manipulables experimentalmente (desentonamientos, intensidad de los láseres, etc.) [37,52]. A manera de ejemplo, consideremos el esquema EIT ilustrado en la figura (3.4). Se definen las frecuencias de Rabi como Ω_{12} y Ω_{23} y los desentonamientos a un solo fotón entre los campos $E_1(\omega_1)$ y $E_2(\omega_2)$ con respecto a las transiciones atómicas con frecuencias ω_{12} y ω_{23} como $\Delta_{12} = \omega_{12} - \omega_1$ y $\Delta_{23} = \omega_{23} - \omega_2$, respectivamente. En éste caso la EIT es descrita mediante el elemento de matriz ρ_{12} cuyas partes real e imaginaria deberían desaparecen cuando se está en resonancia. A partir de la



Figura 3.4: Esquema de un sistema de tres niveles en configuración escalera con EIT donde Δ_{12} y Δ_{23} son los desentonamientos a un solo fotón.

ecuación maestra de Lindblad, se obtiene un grupo de ecuaciones acopladas denominadas comunmente ecuaciones ópticas de Bloch, las cuales describen la evolución temporal de las coherencias ρ_{12} , ρ_{23} y ρ_{13} . Al considerar el caso del estado estacionario, las derivadas temporales de estas coherencias serán iguales a cero lo que proveerá una simplificación considerable en la obtención de las soluciones de dichas ecuaciones acopladas, de donde se obtiene la expresión efectiva de ρ_{12} (cantidad de interés al momento de describir la EIT en éste caso), dada en términos de parámetros conocidos [60]. Si el sistema átomo-campo es excitado mediante láseres pulsados, la dinámica del sistema cambiará en el tiempo por lo que es necesario aplicar un tratamiento teórico que incluya dicha dependencia temporal. Sin embargo, en algunos casos los resultados obtenidos en las derivaciones dependientes del tiempo son similares a los obtenidos en el límite estacionario [61]. Por otro lado, al derivar la propagación de los pulsos atravesando ensembles átomicos se obtiene que las ecuaciones de la matriz densidad dependientes del tiempo estarán acopladas a las ecuaciones de Maxwell, lo cual es necesario al momento de calcular la propagación de pulsos en fase con sus respectivas modificaciones de forma [62–65].

3.2. Susceptibilidad no lineal a tercer orden

En 1990, Harris *et al* mostraron que, aplicando un campo fuerte entre un estado metaestable y un estado superior acoplado al estado base de un gas atómico, era posible obtener una susceptibilidad de tercer orden aumentada en resonancia e inducir al mismo tiempo la transparencia del medio [2].

El modelo teórico utilizado para llevar a cabo ésta tarea es el esquema de niveles ilustrado en la figura (3.5). En éste modelo el estado metaestable $|2\rangle$ es poblado a través de la aplicación de dos láseres de frecuencias ω_a y ω_b , mientras que la acoplación entre este estado metaestable y el estado ensanchado $|3\rangle$ se hace mediante un haz de luz intenso de frecuencia ω_c . Generando de esta manera un haz que cumple la suma de frecuencias $\omega_d = \omega_a + \omega_b + \omega_c$. Finalmente, se supone que $|1\rangle - |3\rangle$ es una transición resonante y que en la ausencia de ω_c , la radiación generada con frecuencia ω_d es fuertemente absorbida. Cuando la frecuencia de Rabi del campo de acoplamiento excede el ensanchamiento Doppler de la transición $|1\rangle - |3\rangle$, el medio se vuelve transparente en el centro de linea. Esta transparencia se debe a la interfencia destructiva (Autler-Townes) de las componentes divididas de la transición $|1\rangle - |3\rangle$. Aunque se podría esperar que esta interfencia también podría anular la no linealidad que conlleva a la generación de ω_d , esto no sucede debido a un cambio de signo en los eigenvectores vestidos. En otras palabras, para las frecuencias generadas entre las componentes Autler-Townes, existe una tendencia hacia una interferencia constructiva más que a una destructiva en la susceptibilidad no lineal. Antes de continuar cabe mencionar algunos trabajos previos que reportaron procesos similares: La generación de EIT usando campos electromagnéticos observada por Knight [66]. Por otro lado Armstrong v Wynne identificaron que las interferencias tipo Fano en algunos procesos de fotoionización y autoionización no se presentan en las susceptibilidades a tercer orden [67]. Finalmente Pavlov et al observaron un aumento en la generación de suma de frecuencias mediante la inducción de un estado tipo Fano [68]. En contraste, el modelo teórico expuesto en ésta sección no involucra fotoionización pero el estado 3 puede decaer de manera espontánea o por autoionización [2].

En principio, se consideran las susceptibilidades vestidas de un átomo simple sobre el que incide un campo electromagnético con frecuencias $\omega_a, \omega_b, \omega_c$ y ω_d , luego se incluyen los efectos de desentonamiento por colisiones y ensanchamiento Doppler. Además, se calcula el momento dipolar en la frecuencia ω_d mediante las susceptibilidades lineal y no lineal a tercer orden



Figura 3.5: Diagrama de niveles de energía para el proceso de suma de frecuencias $\omega_d = \omega_a + \omega_b + \omega_c$. El estado $|3\rangle$ está ensanchado y tiene una tasa de decaimiento Γ_3 . Cuando un campo fuerte a una frecuencia ω_c está sintonizado en el centro de línea de la transición $|2\rangle - |3\rangle$, el medio se vuelve transparente en la transición resonante $|1\rangle - |3\rangle$ lo que $\chi^{(3)} L$ aumente [2].

las cuales dependen de la magnitud del campo de acoplamiento ω_c . Las cantidades físicas consideradas son [?]

$$\mathbf{E}(t) = \operatorname{Re}\left\{\sum_{k=a}^{d} E(\omega_k) e^{i\omega_k t}\right\},\tag{3.8}$$

$$P(t) = \operatorname{Re}\left\{\sum_{k=a}^{d} P(\omega_k)e^{i\omega_k t}\right\},\tag{3.9}$$

$$P(\omega_d) = \epsilon_0 \chi_D^{(1)}(-\omega_d, \omega_d) E(\omega_d) + \frac{3}{2} \epsilon_0 \chi_D^{(3)}(-\omega_d, \omega_a, \omega_b, \omega_c) E(\omega_a) E(\omega_b) E(\omega_c).$$
(3.10)

Utilizando las ecuaciones de evolución temporal de las amplitudes de probabilidad b_i con i = 1, 2, 3 de un átomo simple dadas por [2],

$$\frac{db_1}{dt} = i\frac{\Omega_{12}}{2}b_2 + i\frac{\Omega_{13}}{2}b_3,$$

$$\frac{db_2}{dt} + i\Delta\tilde{\omega}_{21}b_2 = i\frac{\Omega_{12}^*}{2}b_1 + i\frac{\Omega_{23}}{2}b_3,$$

$$\frac{db_3}{dt} + i\Delta\tilde{\omega}_{31}b_3 = i\frac{\Omega_{13}^*}{2}b_1 + i\frac{\Omega_{23}^*}{2}b_2.$$
 (3.11)

donde

$$\Delta \tilde{\omega}_{21} = \Delta \omega_{21} - i \frac{\Gamma_2}{2},$$

$$\Delta \tilde{\omega}_{31} = \Delta \omega_{31} - i \frac{\Gamma_3}{2},$$

$$\Omega_{12} = \sum_i \frac{\Omega_{1i} \Omega_{i2}}{2} \left(\frac{1}{\omega_i - \omega_a} + \frac{1}{\omega_i - \omega_b} \right),$$
(3.12)

son los desentonamientos entre las transiciones atómicas y el campo eléctrico incidente con $\Delta \omega_{21} = \omega_2 - \omega_1 - \omega_a - \omega_b$ y $\Delta \omega_{31} = \omega_3 - \omega_1 - \omega_d$ dados en términos de las tasas de decaimiento Γ_2 y Γ_3 correspondientes a los estados $|2\rangle$ y $|3\rangle$, mientras que Ω_{ij} son las frecuencias de Rabi en donde Ω_{12} es una frecuencia de Rabi efectiva la cual se obtuvo sumando sobre los estados intermedios $|i\rangle$. Considerando el estado estacionario, se tiene que las derivadas temporales en la ecuación (3.11) desaparecen, y suponiendo que $|b_1|^2 = 1$ y que Ω_{12} y Ω_{13} son muy pequeñas comparadas con Ω_{23} , se procede a resolver b_2 y b_3 . Por consiguiente, las susceptibilidades vestidas definidas en (3.10) son

$$\chi_{D}^{(1)}(-\omega_{d},\omega_{d}) = \frac{|\mu_{13}|^{2}N}{\epsilon_{0}\hbar} \left(\frac{-4\Delta\omega_{21}(|\Omega_{23}|^{2} - 4\Delta\omega_{21}\Delta\omega_{31}) + 4\Delta\omega_{31}\Gamma_{2}^{2}}{(4\Delta\omega_{21}\Delta\omega_{31} - \Gamma_{2}\Gamma_{3} - |\Omega_{23}|^{2})^{2} + 4(\Gamma_{2}\Delta\omega_{31} + \Gamma_{3}\Delta\omega_{21})^{2}} - i\frac{8\Delta\omega_{21}^{2}\Gamma_{3} + 2\Gamma_{2}(|\Omega_{23}|^{2} + \Gamma_{2}\Gamma_{3})}{(4\Delta\omega_{21}\Delta\omega_{31} - \Gamma_{2}\Gamma_{3} - |\Omega_{23}|^{2})^{2} + 4(\Gamma_{2}\Delta\omega_{31} + \Gamma_{3}\Delta\omega_{21})^{2}} \right),$$

$$(3.13)$$

$$\chi_D^{(3)}(-\omega_d,\omega_a,\omega_b,\omega_c) = \frac{\mu_{23}\mu_{31}N}{6\epsilon_0\hbar^3(\Delta\tilde{\omega}_{21}\Delta\tilde{\omega}_{31} - |\Omega_{23}|^2/4)} \sum_i \mu_{1i}\mu_{i2}\left(\frac{1}{\omega_i - \omega_a} + \frac{1}{\omega_i - \omega_b}\right) \quad (3.14)$$

donde N es la densidad atómica y $\mu_{lm} = \langle l|e\mathbf{r}|m\rangle$ es el momento dipolar correspondiente a la transición entre los niveles $|l\rangle$ y $|m\rangle$. Nótese que las ecuaciones (3.13) y (3.14) aún no incluyen desfasamiento por colisiones ni ensanchamiento Doppler.

La transparencia del medio está determinada por la parte imaginaria de $\chi_D^{(1)}$, mediante la longitud de absorción inversa $\alpha = -2\pi \text{Im}[\chi_D^{(1)}]/\lambda$. En este punto los resultados obtenidos muestran que en el caso cuando $\Gamma_2 = \Delta \omega_{21} = 0$, se obtiene transparencia perfecta en la frecuencia generada ω_d (figura 3.6 a), en donde cabe mencionar que la frecuencia de mínima de absorción corresponde a la suma de frecuencias $\omega_2 + \omega_c$. Por otro lado, cuando $\Omega_{23} \gg \Gamma_3 > \Gamma_2$, se tiene que el ancho de la transparencia y la pérdida mínima varian en función de $|\Omega_{23}|$ y $\Gamma_2/|\Omega_{23}|^2$, respectivamente. En éste régimen, la tasa de decaimiento del estado $|2\rangle$ es la que determina la transparencia y no la del estado $|3\rangle$.

En contraste, el índice de refracción del medio está determinado por la parte real de $\chi_D^{(1)}$ mediante la relación $n-1 = \text{Re}\chi_D^{(1)}/2$ [2]. De esta manera, de la figura (3.6 b) se observa que n-1 = 0 sobre la línea del centro para cualquier valor de Ω_{23} , por lo que la contribución de la resonancia al índice de refracción es cero aunque el medio sea altamente dispersivo. Finalmente, la figura (3.6 c) muestra que la magnitud de $\chi_D^{(3)}$ es incrementada de manera resonante y posee intereferencia constructiva en el centro de la transparencia.



Figura 3.6: Partes real e imaginaria de $\chi_D^{(1)}$ y $|\chi_D^{(3)}|$ en función del desentonamiento normalizado del estado $|3\rangle$. Tanto $\operatorname{Re}\chi_D^{(1)}$ como $\operatorname{Im}\chi_D^{(1)}$ están normalizados a la magnitud del pico de $\operatorname{Im}\chi_D^{(1)}$ cuando $\Omega_{23} = 0$ [2].

3.2.1. Ensanchamiento Doppler y colisiones de desfase

En la obtención de susceptibilidades efectivas, es necesario tener en cuenta el movimiento de los átomos lo que conduce a incluir algunos fenómenos que resultan de dicho movimiento en el modelo teórico. En una celda de vapor, los átomos se mueven en el espacio con diferentes velocidades cinéticas. Éste movimiento cinético produce un desplazamiento Doppler en la frecuencia de un campo electromagnético incidente como lo "ve" el átomo. Velocidades cinéticas diferentes resultan en desplazamientos diferentes, por lo que el efecto acumulado es el ensanchamiento de las líneas espectrales. Éste fenómeno es denominado **ensanchamiento Doppler** del que cabe resaltar es un tipo de ensanchamiento inhomogéneo [69]. Por otro lado, existen tipos de ensanchamiento homogéneo lo que significa que todos los procesos de decaimiento energético y mecanismos de desfasamiento actúan por igual sobre las transiciones dipolares en el ensemble atómico, por lo que la respuesta de cada uno de los átomos es ensanchada de la misma manera. Tal es el caso de las **colisiones de desfase**, el cual consiste en la interrupción de la fase de la radiación emitida por los átomos dada por una tasa γ la cual no incrementa la tasa de decaimiento de las poblaciones. Cuando éste proceso domina sobre los demás mecanismos de ensanchamiento, éste produce un ensanchamiento de emisión

homogéneo con una distribución Lorentziana [70].

Para incluir el efecto de colisiones de desfase, se deben reescribir las ecuaciones en (3.11) usando el formalismo de la matriz densidad agregando unos términos colisionales macroscópicos $\gamma_{12}, \gamma_{13} \neq \gamma_{23}$ a las ecuaciones fuera de la diagonal. Además, manteniendo las mismas suposiciones que en la sección anterior, se puede mostrar que las susceptibilidades en las ecuaciones (3.13) y (3.14) siguen siendo válidas pero con las cantidades $\Gamma_2 \neq \Gamma_3$ reemplazadas por $\Gamma_2 + \gamma_{12}$ $\neq \Gamma_3 + \gamma_{13}$, respectivamente. Una perturbación que desplace la frecuencia del estado $|3\rangle$ del átomo desnudo, en la presencia de Ω_{23} , conlleva a que los estados vestidos se desplacen en direcciones opuestas lo que resulta en un cero en la perturbación de fase integrada en ω_d [71]. De esta manera, la transparencia solo es reducida por colisiones en el canal de desfase $|1\rangle - |2\rangle$. Por otro lado, para incluir ensanchamiento inhomogéneo o Doppler se debe integrar dichas susceptibilidades sobre una densidad de estados Gaussianos lo cual implica que la cantidad $\Delta\omega_{21}$ para átomos individuales es diferente de cero aún cuando $\Gamma_2 = 0$, de modo que ya no es posible obtener total transparencia.

Retomemos las ecuaciones de Maxwell. Suponiendo que no hay decaimiento de los campos de excitación ω_a, ω_b y ω_c y que la envolvente de dichos campos no cambia en el tiempo, la variación del campo asociado a la frecuencia generada ω_d con respecto a la distancia está dada por

$$\frac{\partial \mathbf{E}(\omega_d)}{\partial z} - \frac{\omega}{2c} \operatorname{Im} \chi_D^{(1)} \mathbf{E}(\omega_d) + i \left[\frac{\omega_d}{2c} \operatorname{Re} \chi_D^{(1)} + \Delta_k \right] \mathbf{E}(\omega_d) = -i \frac{3\omega}{4c} \chi_D^{(3)} \mathbf{E}(\omega_a) \mathbf{E}(\omega_b) \mathbf{E}(\omega_c), \quad (3.15)$$

con la condición de frontera $\mathbf{E}(\omega_d) = 0$ en z = 0. La cantidad Δ_k contiene todos los desentonamientos de fase que resultan de las transiciones aparte de la transición de resonancia. Por consiguiente, las susceptibilidades dadas en la ecuación (3.15) ahora incluyen efectos de desfasamiento por colisiones y ensanchamiento Doppler.

El efecto de la susceptibilidad lineal al crecimiento de $\mathbf{E}(\omega_d)$ es por partida doble ya que, su parte real junto con Δ_k causa un crecimiento y decaimiento periódicos en función de la distancia, mientras que su parte imaginaria causa pérdidas y limita la longitud efectiva del medio no lineal. Suponiendo que ω_d está en el centro de la transición Doppler ensanchada tal que $\operatorname{Re}\chi_D^{(1)} = 0$ y agregando un factor de empatamiento de fase para compensar Δ_k , se tiene que el campo electromagnético ω_d crece hacia un valor de estado estacionario determinado por el cociente entre $|\chi_D^{(3)}|$ y $\operatorname{Im}|\chi_D^{(1)}|$ ilustrado en la figura (3.7) en donde se muestra la cantidad $|\chi_D^{(3)}/\operatorname{Im}\chi_D^{(1)}|^2$ en función del cociente entre Ω_{23} y el ensanchamiento Doppler de la transición $|1\rangle - |3\rangle$ [2]. Cuando Ω_{23} es pequeño comparado con el ensanchamiento Doppler, el medio permanece opaco obteniéndose el resultado tradicional de la óptica no lineal. En contraste, cuando Ω_{23} es mucho más grande que el ensanchamiento Doppler el medio se vuelve transparente. Adicionalmente, $|\chi_D^{(3)}|$ y $\operatorname{Im}|\chi_D^{(1)}|$ la cual (para distancias lo suficientemente grandes) es proporcional a la potencia de la salida generada, incrementa sobre su valor pequeño Ω_{23} por el cuadrado del cociente entre el ensanchamiento Doppler y $\Gamma_2 + \gamma_{12}$. Si $\Gamma_3 < \Delta \omega_{Doppler}$, entonces el comienzo de la transparencia ocurre abruptamente cuando Ω_{23} excede $\Delta \omega_{Doppler}$. Por el contrario, si $\Gamma_3 > \Delta \omega_{Doppler}$ entonces es necesario que Ω_{23} sea grande.



Figura 3.7: $|\chi_D^{(3)}/\text{Im}\chi_D^{(1)}|^2$ en función del radio entre la frecuencia de Rabi ω_{23} y el ensanchamiento Doppler de la transición resonante. La normalización se hizo con respecto al valor más pequeño de éste radio y además se consideró para ésta figura que $\Gamma_2 = 0.01 \Delta \omega_{\text{Doppler}}$ [2].

Suponiendo que los campos son monocromáticos en todas las frecuencias, se tiene que cuando el campo electromagnético en ω_c tiene ancho de línea finito y una forma Lorentziana, este ancho de línea desfasa la transición $|2\rangle - |3\rangle$. Por lo tanto, la mejora general que puede obtenerse está determinada por el cuadrado del cociente entre el ensanchamiento Doppler y la tasa de decaimiento más ancha del estado $|2\rangle$, el ensanchamiento colisional de la transición $|1\rangle - |2\rangle$ o el ancho de línea de ω_c . El ancho de línea de las otras frecuencias conllevarán a empatamiento de fases adicionales, transparencia y limitaciones en la velocidad de grupo.

La transparencia descrita en esta sección se basa en la interferencia la cual es de una naturaleza muy distinta a la que se obtiene saturando los átomos dentro de una distribución inhomogénea. Éste tipo de transparencia requiere una energía continua incidente proveniente del campo electromagnético la cual reduce tanto $\text{Im}\chi^{(1)}$ como $|\chi^{(3)}|$ con el fin de dejar la no linealidad producto de la longitud efectiva prácticamente sin cambios. En el sistema descrito anteiormente, cuando $\Delta\omega_{21} = \Gamma_2 = 0$, el sistema atómico no toma energía del campo. Por otro lado, aunque las susceptibilidades dadas en las ecuaciones (3.13) y (3.14) sólo son válidas en el límite en el que el campo con ω_d es muy pequeño, para cualquier valor de éste campo el medio permanece transparente. Ésta transparencia se obtiene mediante el incremento del atrapamiento de población "coherente" del estado $|2\rangle$. Es importante recalcar que la contribución a $\chi^{(3)}$ de todos los caminos de perturbación que involucran la transición resonante $|1\rangle - |3\rangle$ pero no el estado $|2\rangle$, son cero. Además, tampoco es posible crear un efecto de este tipo mediante la división del estado $|3\rangle$ con, por ejemplo, un campo magnético estático. Medios atómicos en el espectro visible o el ultravioleta con densidades de 10⁶ átomos/cm³, se vuelven opacos a distancias del orden de la longitud de onda dentro de este espectro. De esta manera, para obtener varios centímetros de transparencia se requiere una frecuencia de Rabi de la transición $|2\rangle - |3\rangle$ de 10 a 50 veces el ensanchamiento Doppler de la transición resonante, lo cual requiere potencias de varios MW/cm², metaestabilidad del estado $|2\rangle$ y un ancho de línea del láser de acoplamiento lo suficientemente estrecho. Bajo éstas condiciones se encuentra un mejoramiento en la eficiencia de conversión y una ganancia parámetrica de cuatro frecuencias, en comparación con las fórmulas tradicionales de la óptica no lineal, las que a veces exceden los 10⁴ ordenes de magnitud en la eficiencia de conversión. La susceptibilidad no lineal producto de la longitud se vuelve comparable a los medios cristalinos de segundo orden, ofreciendo de esta manera la posibilidad de mejorar el funcionamiento de los dispositivos no lineales en un intervalo amplio del espectro electromagnético [2].

3.3. Teoría del sistema de cuatro niveles

3.3.1. Conversión de frecuencia mejorada

Harris y sus colegas identificaron que el mejoramiento de la conversión de la frecuencia óptica no lineal como una de las mayores ventajas de la transparencia inducida electromagnéticamente en su paper de 1990 [2]. Adicionalmente, Hemmer introdujo el esquema doble lambda como una herramienta importante en la EIT basada en el mezclado de cuatro ondas [72]. Por otro lado, la preparación coherente de una coherencia máxima fue encontrada por diversos grupos de investigación incluyendo el grupo de Harris en Estados Unidos [73] y el de Hakuta en Japón [74] para mejorar significativamente la eficiencia de conversión en el FWM ya que, mientras la interferencia destructiva reduce la susceptibilidad lineal de un sistema vestido por un láser, esto no ocurre para la susceptibilidad no lineal la cual de hecho experimenta interferencia constructiva. Para ver como ésto conduce a un mejoramiento en la eficiencia del mezclado de frecuencias se necesita considerar los factores que determinan como un campo generado puede crecer de manera eficiente en un proceso de FWM [1].

Los láseres aplicados a un medio atómico cercanos a la resonancia excitan diversas componentes de la frecuencia de la polarización de dicho medio, lo que genera nuevas frecuencias dadas por la combinación de las frecuencias anteriormente mencionadas. La figura (3.8) ilustra cuatro esquemas en las que átomos de tres y cuatro niveles son excitados en resonancia a uno o dos fotones por dichos láseres los que se analizarán en detalle más adelante. Cabe resaltar que la componente de la polarización en las nuevas frecuencias actuará como una fuente de nuevos campos electromagnéticos [1]. En dichos esquemas, la polarización del medio $P(\omega_4)$ es excitada a una frecuencia ω_4 por los campos aplicados en ω_1 , ω_2 y ω_3 lo que resultará en la generación de un nuevo campo electromagnético en ω_4 , donde el crecimiento del nuevo campo depende de la magnitud del término fuente no lineal $P^{nl}(\omega_4)$ y de la polarización lineal $P^l(\omega_4)$ del medio en esta frecuencia, la cual determinará la absorción y la dispersión del campo generado. la ecuación que describe el crecimiento de éste nuevo campo E_4 es derivado de las ecuaciones de Maxwell dentro de la aproximación de la envolvente que varía lentamente [75] y que puede escribirse en términos de la componente de la frecuencia positiva del campo como

$$\frac{\partial E_4}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial E_4}{\partial t} = \frac{i\omega_4}{2c\epsilon_0} (P^{nl} + P^l), \qquad (3.16)$$

donde el carácter vectorial del campo y la polarización fueron omitidos por simplicidad y el término al lado derecho contiene el efecto de la polarización lineal sobre la propagación del campo generado y el efecto de la polarización no lineal que es la fuente del nuevo campo.

La respuesta de un medio a un campo eléctrico es dominada por su polarización. De esta manera, bajo el formalismo del operador de densidad podemos escribir la polarización en función de la traza de este operador como

$$P = \rho \operatorname{Tr}[\hat{\mu}\rho] = \rho(\mu_{12}\rho_{21} + \mu_{13}\rho_{31} + \mu_{23}\rho_{32}).$$
(3.17)

Es posible expresar la polarización P en términos de las susceptibilidades usando la expansión de la polarización, de modo que la respuesta lineal del átomo al campo en la frecuencia ω_4 se escribe como

$$P^{(1)}(\omega_4) = \epsilon_0 \chi^{(1)} E_4, \qquad (3.18)$$

y la respuesta no lineal como

$$P^{(3)}(\omega_4) = \frac{3}{2} \epsilon_0 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3, \qquad (3.19)$$

donde E_i es la amplitud del campo eléctrico asociada con la componente de la frecuencia ω_i . Las formas explícitas de dichas susceptibilidades se pueden ver en la sección (3.2) o para un tratamiento puramente cuántico se pueden consultar en [75]. En general, para un mezclado no lineal fuera de resonancia la susceptibilidad será caracterizada por la aparición de tres términos de desentonamiento en el denominador mientras que para la susceptibilidad lineal solo habrá un término de desentonamiento. Como se mostró en la sección (3.2), en el caso cuando hay EIT es necesario usar las susceptibilidades vestidas las cuales incluyen el efecto de acoplamiento fuerte del campo para todos los órdenes. Cabe resaltar que es debido a ésta diferencia entre las últimas susceptibilidades y las convencionales que se obtienen las ventajas para el mezclado no lineal puesto que, las susceptibilidades vestidas reflejan la naturaleza resonante de los campos involucrados contiendo además el importante carácter de interferencia debido al campo aplicado. También es importante notar que, es necesario considerar efectos de ensanchamiento Doppler y de colisiones de desfase para obtener susceptibilidades efectivas que puedan ser usadas en modelos teóricos de sistemas físicos realistas. De esta manera, la forma de la ecuación que describe el crecimiento (estacionario) del campo E_4 (que cambia lentamente) ahora puede reescribirse en términos de dichas susceptibilidades vestidas

$$\frac{dE_4}{dz} = i\frac{\omega_4}{4c}\chi^{(3)}E_1E_2E_3e^{i\Delta kz} - \frac{\omega_4}{2c}\mathrm{Im}[\chi^{(1)}]E_4 + i\frac{\omega_4}{2c}\mathrm{Re}[\chi^{(1)}]E_4, \qquad (3.20)$$

donde $\Delta k = k_4 - (k_1 + k_2 + k_3)$ es el desfasamiento del vector de onda debido al efecto del índice de refracción de todas las resonancias en el átomo o también debido a otros efectos como por ejemplo la geometría del haz y la dispersión de plasma.



Figura 3.8: Diferentes esquemas para procesos de mezclado de cuatro ondas mejorados basados en EIT y fenónemos de interferencia relacionados: (i) Se obtiene generación de suma de frecuencias (ω_4) de dos pulsos de bombeo (ω_1 y ω_2) y un campo de excitación fuerte (ω_3); (ii) Conversión ascendente de un campo de bombeo (ω_3) a un campo generado (ω_4) debido a coherencia máxima preparada por dos campos de excitación fuertes (ω_1 y ω_2); (iii) variante de (ii) fuera de resonancia; (iv) Generación paramétrica de dos campos (ω_3 y ω_4) provenientes de dos campos de bombeo (ω_1 y ω_2) en configuración de dispersión hacia adelante y hacia atrás [1].

Es fácil ver de la ecuación (3.16) que si la polarización no lineal alcanza un valor grande entonces la fuente del nuevo campo será fuerte lo que implica un mejoramiento en la generación del nuevo campo. Como se mencionó anteriormente, la absorción y refracción del campo generado están determinados por la polarización lineal del medio en la frecuencia generada por lo que la refracción tiene un efecto muy importante sobre el crecimiento del campo determinando si o no el campo generado permanece en fase con la polarización que éste excita. Ésta condición de *empatamiento de fase* y establece que (en resonancia donde $\operatorname{Re}[\chi^{(1)}] = 0$) $\Delta k = 0$ para un crecimiento efectivo del campo. Sin embargo, para un campo generado en resonancia tanto la absorción como la dispersión pueden representar un problema, ya que en general Δk será finito resultando en una longitud limitada sobre la cual el campo crece antes de entrar en desfasamiento con la polarización de excitación, es decir, $l_{coh} = 1/\Delta k$. Pero en presencia de la EIT y eliminando la susceptibilidad lineal, no hay efectos de absorción ni de refracción debido al nivel resonante de modo que solo las transiciones fuera de resonancia a otros niveles contribuyen al desfasamiento del vector de onda [1].

Analicemos los esquemas de mezclado de cuatro ondas ilustrados en la figura (3.8) en los que se ha tomado ventaja de la EIT y efectos relacionados. Existen diversos mecanismos interconectados mediante los cuales la coherencia atómica preparada por los láseres aplicados pueden incrementar la eficiencia de la conversión de dichos procesos de mezclado de ondas: En (i) se tiene un esquema de mezclado de cuatro ondas en el que se utiliza resonancia a uno y dos fotones para los campos aplicados, generando un campo en resonancia con una transición atómica. De esta manera, el campo generado y el campo aplicado en resonancia a un solo fotón actúan como campos de prueba y acoplamiento, respectivamente, en un esquema lambda EIT, en donde la EIT conduce a una eliminación de la absorción y la refracción para el campo generado por lo que la susceptibilidad no lineal es aumentada por la proximidad a la resonancia debido a que este término está sujeto a a interferencia constructiva entre el par de estados vestidos. Este mecanismo es aplicable para láseres pulsados y de onda continua (cw por sus siglas en inglés) [2,76].

En el esquema (ii) se tiene un par de campos fuertes aplicados de manera resonante a un sistema de tres niveles en configuración lambda cercanos a la resonancia Raman y a un solo fotón. Aquí la presencia de la EIT elimina la absorción y la dispersión del medio, por lo que dichos campos pueden propagarse sin pérdidas o distorsión aún en el interior de un gas ópticamente denso lo que conlleva a un estado oscuro con amplitud máxima y coherencia atómica en fase generado a lo largo de la longitud de propagación. Adicionalmente, el FWM producto de esta coherencia máxima conduce a una eficiencia de conversión ascendente grande lo cual requiere la aplicación de campos con la suficiente potencia para asegurar la evolución adiabática del estado oscuro lo que es posible solo en experimentos libres de efecto Doppler con láseres cw o láseres pulsados de alta potencia [77–79].

(iii) Sí dos campos muy fuertes son aplicados cerca a la resonancia Raman éstos conllevarán a la formación de una coherencia máxima del estado oscuro incluso si están bastante desentonados de la resonancia a un solo fotón (desentonamiento Δ en la figura 17(iii)) siempre que dichos campos sean lo suficientemente fuertes de modo que se cumpla la condición $\Omega_1\Omega_2 > \Delta\gamma_{21}$ (donde γ_{21} es la tasa de desfasamiento de la coherencia $|1\rangle - |2\rangle$). En éste caso, la EIT no juega un papel en la medida en que a la absorción se refiere, puesto que los campos se encuentran lejos de la resonancia. Sin embargo, la selección de la magnitud correcta del desentonamiento Raman puede conducir a la cancelación de la refracción del material para los campos aplicados [80]. Por otro lado, la coherencia máxima en gran medida aumenta la eficiencia de la conversión en el FWM [74]. Si la coherencia máxima es excitada entre estados moleculares vibracionales o rotacionales el medio es muy adecuado para la generación Raman de banda lateral estimulada de alto orden [81], lo cual requiere de altas potencias para alcanzar la evolución adiabática lo que es posible mediante el uso de láseres pulsados. (iv) El tercer campo también puede estar cerca a la resonancia con otra transición. En éste caso el campo generado completa un esquema doble lambda, el cual puede promover el mejoramiento del mezclado. Algunos trabajos que han explorado variantes de éste tipo de sistemas es por ejemplo el de Hemmer y sus colegas en el que utilizaron un esquema doble lambda con tres campos incidentes [72] y el de Zibrov en el que inciden solo dos campos ([82]; Fig. 3.8 iv) en donde dichos campos son aplicados cerca a la resonancia a un solo fotón con transiciones en cada uno de los dos sistemas lambda formados en átomos alcalinos. Este esquema mediante el uso de láseres cw tiene propiedades notables incluyendo, si los campos aplicados son copropagantes, el crecimiento de de ambos campos y, si los campos son contrapropagantes, oscilación sin reflejo, como lo demostró Zibrov *et al.* [82].

Las ventajas de todos estos esquemas yacen en la reducción de la absorción y dispersión de los campos generado y de excitación mientras el término fuente de nuevos campos es aumentado. Además, como consecuencia de la eliminación de la dispersión y absorción del campo de excitación, se pueden obtener valores grandes de la coherencia en los casos (ii), (iii) y (iv) llegando al valor máximo de $\rho_{12} = 0.5$ para todos los átomos dentro de la región de interacción por lo que, el proceso de mezclado de frecuencias se da con la coherencia atómica actuando como el oscilador local con el que el campo de excitación final oscila para producir un campo generado con una eficiencia de conversión alta. Cabe mencionar que se han propuesto e investigado otros sistemas interesantes con aplicaciones de la EIT en óptica no lineal. En uno de éstos se demuestra la alta eficiencia de la generación Raman de banda lateral a diversos ordenes mediante la modulación de los campos ópticos en un medio molecular preparado en un estado altamente coherente de los estados vibracionales $\nu = 0$ y $\nu = 1$ [74,81]. Por otro lado, Harris y Sokolov predijeron la posibilidad de usar el espectro de banda ensanchada de las bandas laterales de fase coherente para sintetizar pulsos ultracortos y luego fue demostrado por el grupo de Stanford [83]. Finalmente, otro efecto interesante ocurre cuando en un medio EIT la velocidad de la luz alcanza la velocidad del sonido, como mostraron Matsko y sus colaboradores, un nuevo tipo de dispersión estimulada de Brillouin debería ocurrir en éste caso en contraste con la situación usual que permite la dispersión eficiente hacia adelante [84].

3.3.2. Mezclado de cuatro ondas en un sistema doble lambda

El mezclado de cuatro ondas con todos los campos ópticos cercanos a la resonancia es alcanzado en átomos de cuatro niveles en configuración doble lambda (ver figura 3.9), en donde el carácter totalmente resonante de la interacción luz-materia para todos los campos (dos de éstos incidentes y los otros dos generados) involucrados en el FWM conducen potencialmente a muy altas eficiencias de conversión y a diversas propiedades importantes. Trabajos pioneros en sistemas de éste tipo en los que los cuatro campos son incidentes han mostrado que, la formación de los estados oscuros depende de la fase relativa de los campos [85,86]. Por otro lado, se han llevado a cabo experimentos en vapor de sodio en el límite de onda continua (cw) que muestran la sensibilidad de la fase de la EIT en un esquema doble lambda [87].

En primer lugar se considera el caso en el que tres campos resonantes son incidentes y el



Figura 3.9: Generación de los campos E_1 y E_2 mediante FWM de dos campos de bombeo en contrapropagación E_f y E_b : A la izquierda, diagrama de niveles y sus respectivos acoplamientos; a la derecha las gráficas del comportamiento límite de de la intensidad de salida de E_1 en función de la longidutd del medio L. El recuadro muestra las distribuciones espaciales de los campos sobre el límite de la oscilación parámetrica en el punto indicado [88].

cuarto campo es generado en resonancia entre el estado más alto de los estados excitados y el estado base. En condiciones apropiadas la presencia de los tres campos elimina no sólo la absorción o refracción resonantes del campo generado sino también de los campos incidentes en sí. El FWM en un sistema doble lambda ha sido estudiado teóricamente en detalle por Korsunsky y Kosachiov [89], quienes encontraron las fases relativas de los cuatro campos evolucionando con propagación sin pérdidas de una manera similar a la predicha por Harris para dos campos propagándose en resonancia en un sistema atómico lambda [90]. La fase y las amplitudes de los cuatro campos, el generado y los incidentes, son predichas para ajustarse ha medida que se propagan con el fin de apoyar la transferencia eficiente de energía entre los campos bajo condiciones sin pérdidas.

Merriam y sus colegas realizaron un experimento de conversión ascendente en un esquema doble lambda excitado por tres campos pulsados resonantes en un vapor de plomo, en el que generaron un nuevo campo en el ultravioleta a 186 nm obteniendo una eficiencia de conversion de más de 0.3 [79]. De esta manera, los experimentos confirman que el esquema doble lambda respalda la propagación sin pérdidas siempre que los pares de campos resonantes lambda tengan cocientes entre las frecuencia de Rabi empatados. Por otro lado, para pulsos que inicialmente no satisfacen la condición de las frecuencias de Rabi empatadas, se tiene que la pérdida de absorción y la transferencia de energía no lineal ocurren hasta que se logra la condición de empatamiento de modo que todos los campos se propagan sin pérdidas ni refracción.
Una alternativa interesante a los esquemas descritos para la conversión óptica no lineal eficiente en un sistema doble lambda fue identificado por Zibrov *et al.* finalizando la década del 90 [82]. En esencia el esquema es muy simple: Dos campos son aplicados de manera resonante, uno en cada uno de los sistemas lambda los cuales se acoplan eficientemente al par de campos que completan la configuración doble lambda. De este modo, los campos generados corresponden a componentes Stokes y antiStokes de los dos campos aplicados. En el experimento original con vapor de rubidio los campos aplicados fueron contrapropagantes, resultando en una ganancia no lineal y un llenado intrínseco eficiente en esta configuración conduciendo a una auto-oscilación sin reflejo a potencias del campo aplicado extremadamente bajas (del orden de los μ W de potencia). Finalmente, un análisis más extenso sobre la dinámica cuántica en este caso ha destacado la posibilidad de utilizar ésta técnica para generar fuentes de banda estrecha de radiación no clásica [88, 91]. Por otro lado, cabe mencionar un artículo del presente año en el que se demuestra experimentalmente el entrelazamiento entre un par de fotones correlacionados mediante mezclado de cuatro ondas considerando un esquema de niveles doble lambda [92].

Capítulo 4 Ecuación maestra de Lindblad

La ecuación maestra de Lindblad es un formalismo que provee de manera precisa la dinámica de sistemas cuánticos abiertos en los que se dan diversos procesos de pérdidas de energía y algunos fenómenos cuánticos presentes en dichos sistemas, como por ejemplo: emisión espontánea, desfase dipolar, decoherencia cuántica y entrelazamiento cuántico, entre otros [93–96]. Ya que el sistema físico modelado en éste trabajo es un sistema atómico interactúando con varios haces de luz el cual presenta decoherencia cuántica debido a emisión espontánea, es necesario utilizar éste formalismo. En la sección (4.1) de éste capítulo se deriva la ecuación maestra general. Luego, en la sección (4.2) se deriva la ecuación maestra de Lindblad considerando un reservorio de modos radiativos. Cabe mencionar que las derivaciones llevadas a cabo en ambas secciones se hicieron siguiendo la referencia [97].

4.1. Derivación de la ecuación maestra general

Se considera un sistema compuesto por un subsistema físico S inmerso en un reservorio B (ver figura 4.1). Suponiendo que la interacción entre el subsistema S y el reservorio B es débil, el hamiltoniano total del sistema completo se escribe como

$$\hat{H}_{total} = \hat{H}_S + \hat{H}_B + \alpha \hat{H}_{SB}, \tag{4.1}$$

donde \hat{H}_S , \hat{H}_B y \hat{H}_{SB} son los hamiltonianos del subsistema, del reservorio y de la interacción subsistema-reservorio, respectivamente y α es una constante arbitraria que mide el grado de acoplamiento entre el subsistema S y el reservorio B. Considerando un operador densidad $\hat{\rho}_{SB}$ asociado a la interacción subsistema-reservorio, la ecuación de Von Neumann-Liouville queda

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_{SB} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}_S + \hat{H}_B + \alpha \hat{H}_{SB}, \hat{\rho}_{SB}].$$

$$(4.2)$$



Figura 4.1: Figura esquemática de la interacción entre un subsistema físico y un reservorio. En éste trabajo, el subsistema físico representado por el operador densidad ρ_S se encuantra inmerso en un reservorio de modos radiativos representado por el operador densidad ρ_B .

Escribiendo el hamiltoniano de interacción \hat{H}_{SB} y el operador densidad $\hat{\rho}_{SB}$ en términos del esquema de interacción, se tiene que

$$\hat{H}(t) = e^{\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_S + \hat{H}_B)t} H_{SB} e^{-\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_S + \hat{H}_B)t},$$
(4.3)

$$\hat{\rho}(t) = e^{\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_S + \hat{H}_B)t} \hat{\rho}_{SB}(t) e^{-\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_S + \hat{H}_B)t}.$$
(4.4)

Por consiguiente, la nueva ecuación de Von Neuman-Liouville para $\rho(t)$ queda

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}(t) = -\frac{i}{\hbar}\alpha[\hat{H}(t),\hat{\rho}(t)].$$
(4.5)

Se quiere encontrar la evolución temporal para $\hat{\rho}_S(t) = tr_B\{\hat{\rho}_{SB}(t)\}$ donde, de acuerdo a la ecuación (4.4)

$$\hat{\rho}_{SB}(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_S + \hat{H}_B)t} \hat{\rho} e^{\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_S + \hat{H}_B)t}, \qquad (4.6)$$

Para llevar a cabo ésta tarea, se considera una solución aproximada de la ecuación (4.5) de la forma

$$\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}(0) - \frac{i}{\hbar} \alpha \int_0^t [\hat{H}(t'), \hat{\rho}(t')] dt'.$$
(4.7)

Sustituyendo la ecuación (4.7) en (4.5),

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}(t) = -\frac{i}{\hbar}\alpha[\hat{H}(t),\hat{\rho}(0)] - \frac{1}{\hbar^2}\alpha^2 \bigg[\hat{H}(t),\int_0^t [\hat{H}(t'),\hat{\rho}(t')]dt'\bigg],$$
(4.8)

donde la ecuación (4.8) satisface la **aproximación de Born**, la cual establece que el acoplamiento entre el subsistema y el reservorio es lo suficientemente débil de modo que se pueden eliminar los procesos de interacción mayores al segundo orden [98]. Aplicando la traza parcial sobre los grados de libertad del reservorio en la ecuación (4.8), se tiene que

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_{S}(t) = -\frac{i}{\hbar}\alpha tr_{B}\{[\hat{H}(t),\hat{\rho}(0)]\} - \frac{1}{\hbar^{2}}\alpha^{2}tr_{B}\left\{\left[\hat{H}(t),\int_{0}^{t}[\hat{H}(t'),\hat{\rho}(t')]dt'\right]\right\}.$$
(4.9)

De la ecuación (4.3), se sabe que $\hat{H}(t)$ depende de \hat{H}_{SB} , donde el hamiltoniano de interacción subsistema-reservorio cumple la condición $tr_B\{[\hat{H}_{SB}, \hat{\rho}(0)]\} = 0$, por lo que la ecuación (4.9) se puede reescribir como:

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_{S}(t) = -\frac{1}{\hbar^{2}}\alpha^{2}tr_{B}\left\{\left[\hat{H}(t), \int_{0}^{t} [\hat{H}(t'), \hat{\rho}(t')]dt'\right]\right\}.$$
(4.10)

Integrando la ecuación (4.10) entre t y t',

$$\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{\rho}_{S}(t') = -\frac{1}{\hbar^{2}} \alpha^{2} \int_{t}^{t'} dt' tr_{B} \left\{ \left[\hat{H}(t), \int_{0}^{t'} [\hat{H}(t''), \hat{\rho}(t'')] dt'' \right] \right\},$$
(4.11)

vemos que la diferencia entre $\hat{\rho}_S(t)$ y $\hat{\rho}_S(t')$ es del segundo orden de magnitud en el parámetro α . La ecuación (4.11) aún no es una ecuación Markoviana debido a que la evolución temporal del operador densidad depende de su pasado lo cual se puede apreciar en la integración sobre t y t'. En otras palabras, el comportamiento futuro de un sistema Markoviano debe depender únicamente de su estado presente [98]. De esta manera, aplicando la **aproximación de Markov**, se puede sustituir $\hat{\rho}(t')$ por $\hat{\rho}(t)$ en el integrando de la ecuación (4.10), obteniéndose

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_S(t) = -\frac{1}{\hbar^2}\alpha^2 tr_B \left\{ \left[\hat{H}(t), \int_0^t [\hat{H}(t'), \hat{\rho}(t)] dt' \right] \right\}.$$
(4.12)

Haciendo $\alpha = 1$, la ecuación anterior toma la forma

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_{S}(t) = -\frac{1}{\hbar^{2}}tr_{B}\left\{\left[\hat{H}(t), \int_{0}^{t} [\hat{H}(t'), \hat{\rho}(t)]dt'\right]\right\}.$$
(4.13)

Suponiendo que inicialmente los operadores $\hat{\rho}_S(t)$ y $\hat{\rho}_B$ son separables, es decir $\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}_B \otimes \hat{\rho}_S(t)$, sustituyendo dentro del integrando (por simplicidad se ignora el símbolo \otimes) y considerando el caso cuando $t \to \infty$ en el límite superior de la integral, obtenemos la **ecuación maestra de Born-Markov**

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_S(t) = -\frac{1}{\hbar^2} \int_0^\infty dt' tr_B \left\{ \left[\hat{H}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_B \hat{\rho}_S(t) \right] \right] \right\}$$
(4.14)

Consideramos un operador $\hat{S}(t)$ que depende de los operadores de creación \hat{S} y aniquilación \hat{S}^{\dagger} , donde \hat{S} es invariante ante la transformación del esquema de interacción y cumple la relación de conmutación

$$[\hat{S}, \hat{H}_S] = 0. \tag{4.15}$$

Por otro lado, consideramos el operador asociado al reservorio dependiente del tiempo $\hat{B}(t)$ en el esquema de interacción

$$\hat{B}(t) = e^{it\hat{H}_B}\hat{B}e^{-it\hat{H}_B},\tag{4.16}$$

donde éste operador representa al conjunto de osciladores acoplados al subsistema \hat{S} . De esta manera, procedemos a calcular el conmutador de la ecuación (4.14),

$$\begin{split} \left[\hat{H}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_B \hat{\rho}_S(t) \right] \right] &= \hbar \left[\hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t) + \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t), \left[\hat{H}(t') \hat{\rho}_B \hat{\rho}_S(t) \right] \right], \\ &= \hbar \left[\hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_B \hat{\rho}_S(t) \right] \right], \\ &+ \hbar \left[\hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_B \hat{\rho}_S(t) \right] \right]. \end{split}$$
(4.17)

Derivando la forma explícita de cada término en la ecuación (4.17):

$$\begin{split} \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\right]\right] &= \hbar \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t), \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t'), \hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\right]\right], \\ &= \hbar \hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t) \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t'), \hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\right] \hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t), \\ &= \hbar \hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t) \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t')\right]\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t) \qquad (4.18) \\ &= \hbar \hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t) \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t')\right] \\ &- \hbar \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t')\right]\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t) \\ &+ \hbar \hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t) \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t')\right]\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t). \end{split}$$

junto con

$$\begin{split} \left[\hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \right] \right] &= \hbar \left[\hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t), \left[\hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t'), \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \right] \right], \\ &= \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \left[\hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t'), \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \right] \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t), \\ &= \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \left[\hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \right] \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \\ &= \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \left[\hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \right] \\ &- \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \left[\hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \right] \\ &- \hbar \left[\hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \right] \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \\ &+ \hbar \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \left[\hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') + \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \right] \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t). \end{split}$$

Expandiendo las ecuaciones (4.18), (4.19) y agrupando los términos semejantes en \hat{S} y $\hat{B},$ se obtiene

$$\begin{split} \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\right]\right] &= \hbar\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t) + \hbar\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t')\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t) \\ &- \hbar\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t') - \hbar\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t') \\ &- \hbar\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t') - \hbar\hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t')\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t) \\ &+ \hbar\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t) + \hbar\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t')\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t), \\ &= \hbar\hat{S}\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B} + \hbar\hat{S}\hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{B}(t')\hat{\rho}_{B} \\ &- \hbar\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{\rho}_{B}\hat{B}^{\dagger}(t') - \hbar\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{\rho}_{B}\hat{B}(t') \\ &- \hbar\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B}\hat{B}^{\dagger}(t) - \hbar\hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{B}(t')\hat{\rho}_{B}\hat{B}^{\dagger}(t) \\ &+ \hbar\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{S}\hat{\rho}_{B}\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}^{\dagger}(t) + \hbar\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{S}\hat{\rho}_{B}\hat{B}(t')\hat{B}^{\dagger}(t) \end{aligned}$$

Además,

$$\begin{split} \left[\hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \right] \right] &= \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) + \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \\ &- \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') - \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \\ &- \hbar \hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) - \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \\ &+ \hbar \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) - \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \\ &= \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{S} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) + \hbar \hat{\rho}_{B} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t) \hat{B}(t') \hat{\rho}_{B} \\ &= \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S} \hat{B}(t) \hat{\rho}_{B} \hat{B}^{\dagger}(t') - \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{B}(t) \hat{B}(t') \hat{\rho}_{B} \\ &- \hbar \hat{S} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S} \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{\rho}_{B} \hat{B}(t) - \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \hat{\rho}_{B} \hat{B}(t') \\ &- \hbar \hat{S} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S} \hat{S}^{\dagger} \hat{\rho}_{B} \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{\rho}_{B} \hat{B}(t) - \hbar \hat{S}^{\dagger} \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S}^{\dagger} \hat{B}(t') \hat{\rho}_{B} \hat{B}(t) \\ &+ \hbar \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S} \hat{S}^{\dagger} \hat{\rho}_{B} \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{B}(t) + \hbar \hat{\rho}_{S}(t) \hat{S}^{\dagger} \hat{S}^{\dagger} \hat{\rho}_{B} \hat{B}(t') \hat{B}(t). \end{split}$$

En éste punto de la derivación, es conveniente trazar sobre los grados de libertad del reservorio en las ecuaciones (4.20) y (4.21). Aunque no se tenga la forma explícita del hamiltoniano del reservorio, se puede aplicar la traza sobre el reservorio de la siguiente manera: Se supone que

$$tr_B\{\hat{B}(t)\hat{B}(t')\hat{\rho}_B\} = tr_B\{\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_B\} = 0, \ \forall t \, y \, t'.$$
(4.22)

De esta manera,

$$tr_{B}\left\{\left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t),\left[\hat{H}(t'),\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\right]\right]\right\} = \hbar\hat{S}\hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)tr_{B}\left[\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{B}(t')\hat{\rho}_{B}\right] - \hbar\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}tr_{B}\left[\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{\rho}_{B}\hat{B}(t')\right] - \hbar\hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}tr_{B}\left[\hat{B}(t')\hat{\rho}_{B}\hat{B}^{\dagger}(t)\right] + \hbar\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{S}tr_{B}\left[\hat{\rho}_{B}\hat{B}(t')\hat{B}^{\dagger}(t)\right].$$

$$(4.23)$$

Adicionalmente,

$$tr_{B}\left\{\left[\hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t),\left[\hat{H}(t'),\hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\right]\right]\right\} = \hbar\hat{S}^{\dagger}\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)tr_{B}\left[\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B}\right] - \hbar\hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}tr_{B}\left[\hat{B}(t)\hat{\rho}_{B}\hat{B}^{\dagger}(t')\right] - \hbar\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}tr_{B}\left[\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B}\hat{B}(t)\right] + \hbar\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{S}^{\dagger}tr_{B}\left[\hat{\rho}_{B}\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)\right],$$

$$(4.24)$$

donde las propiedades cíclicas de la traza proveen que

$$tr_{B}\left\{ \left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t) \right] \right] \right\} = \hbar \left[\hat{S}\hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S} \right] tr_{B}\left\{ \hat{B}^{\dagger}(t)\hat{B}(t')\hat{\rho}_{B} \right\} + \hbar \left[\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{S} - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger} \right] tr_{B}\left\{ \hat{B}(t')\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{\rho}_{B} \right\},$$

$$(4.25)$$

 con

$$tr_{B}\left\{ \left[\hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t) \right] \right] \right\} = \hbar \left[\hat{S}^{\dagger}\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger} \right] tr_{B}\left\{ \hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B} \right\} + \hbar \left[\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{S}^{\dagger} - \hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S} \right] tr_{B}\left\{ \hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)\hat{\rho}_{B} \right\}.$$

$$(4.26)$$

Teniendo en cuenta las ecuaciones (4.25) y (4.26), la ecuación (4.17) se reescribe como

$$tr_{B}\left\{\left[\hat{H}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_{S}(t)\right]\right]\right\} = \hbar^{2}tr_{B}\left\{\left[\hat{S}\hat{B}^{\dagger}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\right]\right]\right\} + \hbar^{2}tr_{B}\left\{\left[\hat{S}^{\dagger}\hat{B}(t), \left[\hat{H}(t'), \hat{\rho}_{B}\hat{\rho}_{S}(t)\right]\right]\right\}, \\ = \hbar^{2}\left[\hat{S}\hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\right]tr_{B}\left\{\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{B}(t')\hat{\rho}_{B}\right\} + \hbar^{2}\left[\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{S} - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\right]tr_{B}\left\{\hat{B}(t')\hat{B}^{\dagger}(t)\hat{\rho}_{B}\right\} + \hbar^{2}\left[\hat{S}^{\dagger}\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\right]tr_{B}\left\{\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B}\right\} + \hbar^{2}\left[\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{S}^{\dagger} - \hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\right]tr_{B}\left\{\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)\hat{\rho}_{B}\right\}.$$

$$(4.27)$$

Definiendo las funciones de correlación

$$F(t) = \int_0^t dt' tr_B \{ \hat{B}(t) \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{\rho}_B \}, \ G(t) = \int_0^t dt' tr_B \{ \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{B}(t) \hat{\rho}_B \},$$
(4.28)

cuya conjugada hermítica es

$$F^{*}(t) = \int_{0}^{t} dt' tr_{B} \{ \hat{B}(t') \hat{B}^{\dagger}(t) \hat{\rho}_{B} \}, \ G^{*}(t) = \int_{0}^{t} dt' tr_{B} \{ \hat{B}^{\dagger}(t) \hat{B}(t') \hat{\rho}_{B} \}.$$
(4.29)

Finalmente, sustituyendo la ecuación (4.27) en (4.14), obtenemos la ecuación maestra en la que la interacción entre \hat{S} y \hat{B} está dada por las funciones de correlación F y G

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_{S}(t) = -\left[\hat{S}\hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\right]G^{*}(t) - \left[\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{S} - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\right]F^{*}(t)
- \left[\hat{S}^{\dagger}\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\right]F(t) - \left[\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\hat{S}^{\dagger} - \hat{S}^{\dagger}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}\right]G(t).$$
(4.30)

4.2. Derivación de la ecuación maestra de Lindblad considerando un reservorio de modos radiativos

En esta sección se procede a derivar las formas explícitas de F y G considerando al reservorio como un conjunto de osciladores acoplados de manera lineal con frecuencia frecuencia ω' , por lo que el operador \hat{B} correspondiente a dicho reservorio se puede definir en términos de operadores de creación $\hat{b}^{\dagger}_{\omega'}$ y aniquilación $\hat{b}_{\omega'}$ como

$$\hat{B} = g_{\omega'}^* \int d\omega' \hat{b}_{\omega'}, \qquad (4.31)$$

donde $g_{\omega'}^*$ es la densidad de modos de oscilación la cual es posible manipular modificando así el grado de acoplamiento entre el subsistema S y el reservorio B, lo que se conoce en la literatura como efecto Purcell [99]. En el esquema de interacción

$$\hat{B}(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_B t} \hat{B} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_B t}.$$
(4.32)

Expandiendo las exponenciales usando las relaciones de conmutación apropiadas, se tiene que

$$\hat{B}(t) = g_{\omega'}^* \int d\omega' \hat{b}_{\omega'} e^{-i\omega' t}, \qquad (4.33)$$

$$\hat{B}^{\dagger}(t) = g_{\omega'} \int d\omega' \hat{b}^{\dagger}_{\omega'} e^{i\omega' t}.$$
(4.34)

Suponiendo inicialmente que el operador densidad del reservorio está dado en términos del estado vacío de la forma

$$\hat{\rho}_B = (|0\rangle|0\rangle...) \otimes (\langle 0|\langle 0|...), \qquad (4.35)$$

se puede realizar la evaluación de las funciones F(t) y G(t) obtenidas en la ecuación (4.28) mediante los operadores $\hat{B}(t)$, $\hat{B}^{\dagger}(t)$ y $\hat{\rho}_{B}$ dados en las ecuaciones (4.33), (4.34) y (4.35),

$$tr_B\{\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_B\} = tr_B\{\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')(|0\rangle|0\rangle...)\otimes(\langle 0|\langle 0|...)\},\tag{4.36}$$

$$tr_B\{\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)\hat{\rho}_B\} = tr_B\{\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)(|0\rangle|0\rangle...)\otimes(\langle 0|\langle 0|...)\}.$$
(4.37)

Considerando una base de estados del reservorio de la forma $\{|b\rangle\}$, las ecuaciones (4.37) y (4.36) adoptan la forma

$$tr_{B}\left\{\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B}\right\} = \sum_{b} \langle b|\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')(|0\rangle|0\rangle...) \otimes (\langle 0|\langle 0|...)|b\rangle,$$

$$= \sum_{b} (\langle 0|\langle 0|...)|b\rangle\langle b|\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')(|0\rangle|0\rangle...),$$

$$= (\langle 0|\langle 0|...)\sum_{b} |b\rangle\langle b|\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')(|0\rangle|0\rangle...),$$

$$= (\langle 0|\langle 0|...)\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')(|0\rangle|0\rangle...).$$
(4.38)

4.2. DERIVACIÓN DE LA ECUACIÓN MAESTRA DE LINDBLAD CONSIDERANDO UN RESERVORIO DE MODOS RADIATIVOS

$$tr_{B}\left\{\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)\hat{\rho}_{B}\right\} = \sum_{b} \langle b|\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)(|0\rangle|0\rangle...) \otimes (\langle 0|\langle 0|...)|b\rangle,$$

$$= \sum_{b} (\langle 0|\langle 0|...)|b\rangle\langle b|\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)(|0\rangle|0\rangle...),$$

$$= (\langle 0|\langle 0|...)\sum_{b} |b\rangle\langle b|\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)(|0\rangle|0\rangle...),$$

$$= (\langle 0|\langle 0|...)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{B}(t)(|0\rangle|0\rangle...).$$

(4.39)

Ahora, expandiendo los operadores $\hat{B}^{\dagger}(t')$ y $\hat{B}(t)$ us ando las ecuaciones (4.33) y (4.34)

$$tr_{B}\{\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_{B}\} = (\langle 0|\langle 0|...\rangle g_{\omega'}^{*} \int d\omega' \hat{b}_{\omega'} e^{-i\omega' t} g_{\omega''} \int d\omega'' \hat{b}_{\omega''}^{\dagger} e^{i\omega'' t'} (|0\rangle|0\rangle...),$$

$$= \int d\omega' \int d\omega'' g_{\omega'}^{*} g_{\omega'} e^{-i(\omega' t - \omega'' t')} (\langle 0|\langle 0|...\rangle \hat{b}_{\omega'} \hat{b}_{\omega''}^{\dagger} (|0\rangle|0\rangle...).$$
(4.40)

$$tr_B \left\{ \hat{B}^{\dagger}(t') \hat{B}(t) \hat{\rho}_B \right\} = (\langle 0|\langle 0|...\rangle g_{\omega''} \int d\omega'' \hat{b}^{\dagger}_{\omega''} e^{i\omega''t'} g^*_{\omega'} \int d\omega' \hat{b}_{\omega'} e^{-i\omega't} (|0\rangle|0\rangle...),$$

$$= \int d\omega' \int d\omega'' g^*_{\omega'} g_{\omega'} e^{-i(\omega't-\omega''t')} (\langle 0|\langle 0|...\rangle \hat{b}^{\dagger}_{\omega''} \hat{b}_{\omega'} (|0\rangle|0\rangle...) = 0.$$

$$(4.41)$$

Reescribiendo la ecuación (4.40) de modo tal que los operadores $\hat{b}^{\dagger}_{\omega''}$ queden a la izquierda de los operadores $\hat{b}_{\omega'}$, teniendo en cuenta la siguiente relación de conmutación

$$\hat{b}_{\omega'}\hat{b}_{\omega''}^{\dagger} = \delta_{\omega'\omega''} + \hat{b}_{\omega''}^{\dagger}\hat{b}_{\omega''}.$$
(4.42)

Obtenemos,

$$tr_B\{\hat{B}(t)\hat{B}^{\dagger}(t')\hat{\rho}_B\} = \int d\omega' \int d\omega'' g^*_{\omega''} g_{\omega'} e^{-i(\omega't-\omega''t')} \delta_{\omega'\omega''} + \int d\omega' \int d\omega'' g^*_{\omega'} g_{\omega''} e^{-i(\omega't-\omega''t')} (\langle 0|\langle 0|...\rangle \hat{b}^{\dagger}_{\omega''} \hat{b}_{\omega'} (|0\rangle|0\rangle...), \qquad (4.43)$$
$$= \int d\omega' |g_{\omega'}|^2 e^{-i\omega'(t-t')}.$$

Incluyendo una densidad de estados en F(t) de la forma

$$J(\omega) = \int d\omega' |g(\omega')|^2 \delta(\omega - \omega')$$
(4.44)

y los resultados obtenidos en las ecuaciones (4.41) y (4.43), las funciones en la ecuación (4.28) quedan

$$F(t) = \int_0^\infty d\omega J(\omega) \int_0^t dt' e^{-i\omega(t-t')}, \qquad (4.45)$$

$$G(t) = 0.$$
 (4.46)

Luego, haciendo un cambio de variable de la forma

$$\tau = t - t', \tag{4.47}$$

$$d\tau = -dt', \tag{4.48}$$

$$\int_{0}^{t} dt' = -\int_{t}^{0} d\tau = \int_{0}^{t} d\tau, \qquad (4.49)$$

se tiene que

$$F(t) = \int_0^\infty d\omega J(\omega) \int_0^t d\tau e^{-i\omega\tau}.$$
(4.50)

Aplicando la condición $t\to\infty$ sobre el límite superior de la integral y el límite cuando $v\to0$ se tiene que

$$\int_{0}^{\infty} d\tau e^{-i\omega\tau} = \lim_{v \to 0} \int_{0}^{\infty} d\tau e^{-i\omega\tau - v\tau},$$

$$= \lim_{v \to 0} \frac{1}{v + i\omega},$$

$$= \lim_{v \to 0} \frac{v - i\omega}{v^{2} + \omega^{2}},$$

$$= \lim_{v \to 0} \frac{v}{v^{2} + \omega^{2}} - \lim_{v \to 0} \frac{i\omega}{v^{2} + \omega^{2}},$$

$$= \pi \delta(\omega) - iP \frac{1}{\omega},$$
(4.51)

donde P representa la parte principal de Cauchy. Por lo tanto, la función F(t) adopta la forma

$$F = \pi \int_0^\infty d\omega J(\omega) \delta(\omega) - iP \int_0^\infty d\omega \frac{J(\omega)}{\omega},$$
(4.52)

que equivale a

$$F = \frac{\gamma + i\xi}{2},\tag{4.53}$$

 con

$$\gamma \equiv 2\pi \int_0^\infty d\omega J(\omega)\delta(\omega), \qquad (4.54)$$

$$\xi \equiv -2P \int_0^\infty d\omega \frac{J(\omega)}{\omega}.$$
(4.55)

Como ya se determinó que G(t) = 0, sustituimos la ecuación (4.53) en la ecuación (4.30), obteniéndose

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_{S}(t) = -\left[\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{S} - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\right]\frac{\gamma - i\xi}{2} - \left[\hat{S}^{\dagger}\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\right]\frac{\gamma + i\xi}{2}
= -\frac{\gamma}{2}\left[\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{S} - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger} + \hat{S}^{\dagger}\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\right]
+ i\frac{\xi}{2}\left[\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\hat{S} - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger} - \hat{S}^{\dagger}\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t) - \hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger}\right].$$
(4.56)

Si la densidad de estados se escoge de manera que $\xi = 0$, entonces

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_S(t) = \gamma \left[\hat{S}\hat{\rho}_S(t)\hat{S}^{\dagger} - \frac{1}{2}[\hat{S}^{\dagger}\hat{S},\hat{\rho}_S(t)]\right].$$
(4.57)

En el esquema de interacción,

$$\hat{\rho}_S(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_S t} \hat{\rho}_S e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_S t},\tag{4.58}$$

por lo que

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}_{S}(t) = \frac{i}{\hbar}e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t}\hat{H}_{S}\hat{\rho}_{S}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t} + e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t}\frac{d\hat{\rho}_{S}}{dt}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t} - \frac{i}{\hbar}e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t}\hat{\rho}_{S}\hat{H}_{S}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t},
= e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t}\frac{d\hat{\rho}_{S}}{dt}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t} + \frac{i}{\hbar}e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t}[\hat{H}_{S},\hat{\rho}_{S}]e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t}.$$
(4.59)

De nuevo en el esquema de interacción, el conmutador en la ecuación (4.57) queda

$$\left[\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger} - \frac{1}{2}[\hat{S}^{\dagger}\hat{S},\hat{\rho}_{S}(t)]\right] = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t}\left[\hat{S}\hat{\rho}_{S}(t)\hat{S}^{\dagger} - \frac{1}{2}[\hat{S}^{\dagger}\hat{S},\hat{\rho}_{S}(t)]\right]e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{S}t}.$$
(4.60)

Sustituyendo las ecuaciones (4.59) y (4.60) en la ecuación (4.57), obtenemos

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_S, \hat{\rho}_S] + \gamma \left[\hat{S}\hat{\rho}_S \hat{S}^{\dagger} - \frac{1}{2} [\hat{S}^{\dagger} \hat{S}, \hat{\rho}_S]\right].$$
(4.61)

La ecuación (4.61) es presentada comúnmente con diversos operadores \hat{S} asociados al sistema físico, denotados como \hat{L} los cuales siguen una combinación lineal. Éstos operadores \hat{L} son denominados operadores de Lindblad, de modo que, la ecuación (4.61) dada en términos de dichos operadores se conoce en la literatura como **ecuación maestra de Lindblad**

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}_S, \hat{\rho}_S] - \frac{\gamma}{2} \sum_j \left[\hat{L}_j^{\dagger} \hat{L}_j \hat{\rho} + \hat{\rho} \hat{L}_j^{\dagger} \hat{L}_j - 2\hat{L}_j \hat{\rho} \hat{L}_j^{\dagger}\right].$$
(4.62)

Si consideramos únicamente el primer término de la ecuación (4.62), obtenemos la ecuación de Liouville-Von Neumann la cual describe la evolución unitaria (es decir, sin pérdidas de energía) del operador densidad. El segundo término se conoce como Lindbladiano el cual describe la evolución no unitaria del operador densidad y surge cuando se aplica la traza parcial (una operación no unitaria) sobre los grados de libertad del reservorio B [97].

Capítulo 5

Dinámica de la interacción electromagnética en un vapor de rubidio

En éste capítulo se determinan las ecuaciones que describen el comportamiento dinámico del sistema físico bajo estudio. En la sección (5.1) se describen brevemente las condiciones teóricas y experimentales del sistema bajo estudio. En la sección (5.2.1) se realiza la derivación del hamiltoniano del sistema aplicando teoría de perturbaciones. En la sección (5.2.2) se obtienen las ecuaciones ópticas de Bloch para el caso del estado estacionario finalizando con la expansión en sus partes real e imaginaria. En la sección (5.2.3) se incluye el efecto Doppler en los desentonamientos a un solo fotón al considerar el movimiento de los átomos mediante una distribución de Maxwell-Boltzmann. En la sección (5.2.4) se describe la polarización no lineal asociada con dicho proceso teniendo en cuenta las contribuciones de las amplitudes de los campos eléctricos lineal y no lineal. Finalmente, en la sección (5.3) se exponen las tablas de datos de los diversos parámetros físicos considerados en éste trabajo y como se calculan algunos de éstos.

5.1. Condiciones experimentales

Se aplican tres láseres a una celda de vapor que contiene ⁸⁵Rb calentada a 100°C y cuya longitud es de 1.5 cm. Los tres láseres aplicados se intersectan en el centro de la celda en ángulos muy pequeños y sus longitudes de onda son de 795 nm (ω_1), 1324 nm (ω_2) y 780 nm (ω_3) con vectores de onda \vec{k}_1 , \vec{k}_2 y \vec{k}_3 , respectivamente (ver figura 5.1). La cintura de cada uno de los láseres es de 1mm aproximadamente y cabe mencionar además que se trabaja en un régimen en el que dichos láseres están por encima de la intensidad de saturación. Por otro lado, los láseres de 795 nm y 1324 nm están polarizados de manera horizontal mientras que la polarización del haz generado corresponde a la del láser de 780 nm la cual se escogió de manera arbitraria para que sea vertical [19]. Éste haz generado con frecuencia angular ω_4 y vector de onda \vec{k}_4 satisface la **conservación de la energía**

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4, \tag{5.1}$$

y la condición de empatamiento de fase

$$\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 + \vec{k}_4 \,. \tag{5.2}$$



Figura 5.1: Figura esquemática de los haces. Las posiciones de los haces incidentes y generado están dadas por los ángulos $\theta_1 = 2^\circ$, $\theta_2 = 0.7^\circ$ y $\theta_4 = 2.7^\circ$. El haz de luz generado a 1367 nm es detectado con un fotodiodo de InGaAs [19].

5.2. Modelo teórico

5.2.1. Hamiltoniano del sistema

Consideremos un átomo interactuando con tres láseres incidentes. Suponiendo que la interacción es débil podemos describir dicha interacción como una perturbación del átomo en reposo. De esta manera, el hamiltoniano del sistema dentro del marco de teoría de perturbaciones se escribe como

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_p,\tag{5.3}$$

donde \hat{H}_0 es el hamiltoniano del átomo sin perturbar y \hat{H}_p es el hamiltoniano de perturbación dado por

$$\hat{H}_p = e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(z, t), \tag{5.4}$$

con e la carga del electrón, **r** la posición del electrón y $\mathbf{E}(z,t)$ el campo eléctrico asociado a cada uno de los láseres incidentes de la forma

$$\mathbf{E}(z,t) = \sum_{j=1}^{4} \left(E_j(z) e^{i(\vec{k}_j z - \omega_j t)} + \text{c.c} \right),$$
(5.5)

donde $E_j(z)$ es la amplitud del campo eléctrico, $|\vec{k}_j| = 2\pi/\lambda_j$ el número de onda, z la distancia recorrida por el láser y ω_j su frecuencia angular.



Figura 5.2: Figura esquemática de un sistema atómico de cuatro niveles en configuración diamante etiquetados por $|n\rangle$ con n = a, b, c, d interactúando con cuatro haces de luz con frecuencias angulares ω_j donde j = 1, 2, 3, 4 y sus respectivos desentonamientos Δ_{nm} . Cabe restaltar que el haz con frecuencia ω_4 (denominado comunmente como "señal") surge por contribuciones no lineales como se describe más adelante.

Aplicando la relación de completez $|a\rangle\langle a| + |b\rangle\langle b| + |c\rangle\langle c| + |d\rangle\langle d| = 1$ [100] a \hat{H}_0 obtenemos

$$\begin{aligned}
\dot{H}_{0} &= (|a\rangle\langle a| + |b\rangle\langle b| + |c\rangle\langle c| + |d\rangle\langle d|)\dot{H}_{0}(|a\rangle\langle a| + |b\rangle\langle b| + |c\rangle\langle c| + |d\rangle\langle d|) \\
&= |a\rangle\langle a|\hat{H}_{0}|a\rangle\langle a| + |a\rangle\langle a|\hat{H}_{0}|b\rangle\langle b| + \dots \\
&+ |b\rangle\langle b|\hat{H}_{0}|a\rangle\langle a| + |b\rangle\langle b|\hat{H}_{0}|b\rangle\langle b| + \dots \\
&+ \dots + \dots + |c\rangle\langle c|\hat{H}_{0}|c\rangle\langle c| + \dots \\
&+ \dots + \dots + |d\rangle\langle d|\hat{H}_{0}|d\rangle\langle d|.
\end{aligned}$$
(5.6)

Sabiendo que $\hat{H}_0|n\rangle = E_n|n\rangle$, entonces

$$\dot{H}_{0} = E_{a}|a\rangle\langle a|a\rangle\langle a| + E_{b}|a\rangle\langle a|b\rangle\langle b| + \dots
 + E_{a}|b\rangle\langle b|a\rangle\langle a| + E_{b}|b\rangle\langle b|b\rangle\langle b| + \dots
 + \dots + \dots + E_{c}|c\rangle\langle c|c\rangle\langle c| + \dots
 + \dots + \dots + E_{d}|d\rangle\langle d|d\rangle\langle d|,$$
(5.7)

donde los únicos elementos que sobreviven son los de la diagonal. Por lo tanto,

$$\hat{H}_0 = \sum_{n=a}^d E_n |n\rangle \langle n| = \sum_{i=n}^d \hbar \omega_n |n\rangle \langle n| \,.$$
(5.8)

Procediendo de manera análoga para el hamiltoniano de perturbación,

$$\hat{H}_{p} = |a\rangle\langle a|e\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(z,t)|a\rangle\langle a| + |a\rangle\langle a|e\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(z,t)|b\rangle\langle b| + \dots + |b\rangle\langle b|e\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(z,t)|a\rangle\langle a| + |b\rangle\langle b|e\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(z,t)|b\rangle\langle b| + \dots$$
(5.9)

Sustituyendo la ecuación (5.5) en (5.9),

$$\hat{H}_{p} = (|a\rangle\langle a|e\mathbf{r}|b\rangle\langle b| + |b\rangle\langle b|e\mathbf{r}|a\rangle\langle a|)E_{l}(z)e^{\pm i(\mathbf{k}_{l}z-\omega_{l}t)} + \dots$$

$$= (\hat{\mu}_{ab}|a\rangle\langle b| + \hat{\mu}_{ba}|b\rangle\langle a|)E_{l}(z)e^{\pm i(\mathbf{k}_{l}z-\omega_{l}t)} + \dots$$
(5.10)

donde $\hat{\mu}_{nm} = \hat{\mu}_{mn}^* = \langle n | e \mathbf{r} | m \rangle$ es el operador de momento dipolar eléctrico asociado a las transiciones atómicas de los niveles $|n\rangle$ y $|m\rangle$. Suponiendo que el término $e^{-i\omega_j t}$ ($e^{i\omega_j t}$) corresponde a la absorción (emisión) de un fotón lo que conlleva a una transición $|n\rangle \rightarrow |m\rangle$ ($|m\rangle \rightarrow |n\rangle$) y aplicando **aproximación de onda rotante** para eliminar términos no conservativos [98], la ecuación (5.10) cuando j = 1 queda

$$\hat{H}_{p1} = (\hbar \Omega_{ab} | a \rangle \langle b | e^{-i\omega_1 t} + \hbar \Omega_{ba} | b \rangle \langle a | e^{i\omega_1 t}), \qquad (5.11)$$

con Ω_{ab} y Ω_{ba} las frecuencias de Rabi dadas por

$$\Omega_{ab} = \frac{\hat{\mu}_{ab}}{\hbar} E_1(z) e^{i\mathbf{k}_1 z}, \quad \Omega_{ba} = \frac{\hat{\mu}_{ba}}{\hbar} E_1(z) e^{-i\mathbf{k}_1 z}.$$
(5.12)

De manera análoga, cuando j = 2, 3, 4 obtenemos

$$\hat{H}_{p2} = (\hbar \Omega_{bc} | b \rangle \langle c | e^{-i\omega_2 t} + \hbar \Omega_{cb} | c \rangle \langle b | e^{i\omega_2 t}), \qquad (5.13)$$

$$\hat{H}_{p3} = \hbar (\Omega_{ad} | a \rangle \langle d | e^{-i\omega_3 t} + \Omega_{da} | d \rangle \langle a | e^{i\omega_3 t}), \qquad (5.14)$$

$$\hat{H}_{p4} = (\hbar \Omega_{dc} | d \rangle \langle c | e^{-i\omega_4 t} + \hbar \Omega_{cd} | c \rangle \langle d | e^{i\omega_4 t}), \qquad (5.15)$$

cuyas respectivas frecuencias de Rabi son

$$\Omega_{bc} = \frac{\hat{\mu}_{bc}}{\hbar} E_2(z) e^{i\mathbf{k}_2 z}, \qquad (5.16)$$

$$\Omega_{ad} = \frac{\hat{\mu}_{ad}}{\hbar} E_3(z) e^{i\mathbf{k}_3 z}, \qquad (5.17)$$

$$\Omega_{dc} = \frac{\hat{\mu}_{dc}}{\hbar} E_4(z) e^{i\mathbf{k}_4 z}.$$
(5.18)

Cabe mencionar que dichas frecuencias de Rabi dan cuenta de la interacción entre el ensemble atómico y los campos externos. Por lo tanto, el hamiltoniano completo escrito en forma matricial es

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} \hbar\omega_a & \hbar\Omega_{ab}e^{-i\omega_1t} & 0 & \hbar\Omega_{ad}e^{-i\omega_3t} \\ \hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_1t} & \hbar\omega_b & \hbar\Omega_{bc}e^{-i\omega_2t} & 0 \\ 0 & \hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_2t} & \hbar\omega_c & \hbar\Omega_{cd}e^{-i\omega_4t} \\ \hbar\Omega_{da}e^{i\omega_3t} & 0 & \hbar\Omega_{dc}e^{i\omega_4t} & \hbar\omega_d. \end{pmatrix}.$$
(5.19)

5.2.2. Ecuaciones ópticas de Bloch

Retomando la ecuación maestra de Lindblad (4.62)

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H},\hat{\rho}] - \frac{\gamma}{2}\sum_{j} \left[\hat{L}_{j}^{\dagger}\hat{L}_{j}\hat{\rho} + \hat{\rho}\hat{L}_{j}^{\dagger}\hat{L}_{j} - 2\hat{L}_{j}\hat{\rho}\hat{L}_{j}^{\dagger}\right],\tag{5.20}$$

donde los operadores de Lindblad en este caso corresponden a todas las permutaciones posibles de los operadores de creación y aniquilación correspondientes a las transiciones atómicas entre niveles, es decir, los operadores $|n\rangle\langle m|$ y $|m\rangle\langle n|$ con n, m = a, b, c, d; mientras que el término γ da cuenta de la tasa de decaimiento espontáneo para las poblaciones y la tasa de desfasamiento de coherencias. De esta manera, procedemos a derivar las ecuaciones ópticas de Bloch asociadas a las poblaciones y coherencias del operador densidad

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} & \rho_{ac} & \rho_{ad} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} & \rho_{bc} & \rho_{bd} \\ \rho_{ca} & \rho_{cb} & \rho_{cc} & \rho_{cd} \\ \rho_{da} & \rho_{db} & \rho_{dc} & \rho_{dd} \end{pmatrix}.$$
(5.21)

Una manera rápida de obtener dichas ecuaciones de Bloch es utilizando las siguientes fórmulas de recurrencia [101]

$$\dot{\hat{\rho}}_{ll} = -\sum_{n} \Gamma_{nl} \hat{\rho}_{ll} + \sum_{n} \Gamma_{nl} \hat{\rho}_{nn} - \frac{i}{\hbar} \sum_{m} (\hbar \Omega_{lm} \hat{\rho}_{ml} - \hat{\rho}_{lm} \hbar \Omega_{ml}) e^{\pm i\omega_j t}, \qquad (5.22)$$

$$\dot{\hat{\rho}}_{mn} = (i\Delta_{mn} - \gamma_{mn})\hat{\rho}_{mn} - \frac{i}{\hbar}\sum_{\nu} (\hbar\Omega_{m\nu}\hat{\rho}_{\nu n} - \hat{\rho}_{m\nu}\hbar\Omega_{\nu n})e^{\pm i\omega_j t}, \qquad (5.23)$$

donde Γ_{nl} es la tasa de decaimiento espontáneo, $\gamma_{mn} = (\Gamma_m + \Gamma_n)/2$ es la tasa de desfasamiento de la coherencia $\hat{\rho}_{mn}$ dada en términos de la tasa de decaimiento total $\Gamma_n = 1/\tau_n \operatorname{con} \tau_n$ el tiempo de vida del nivel n y Δ_{mn} es el desentonamiento entre los campos de acoplamiento externos y la transición $|n\rangle - |m\rangle$. De esta manera, cuando l = a, b, c, d obtenemos para las poblaciones

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\rho}}_{aa} &= -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ab} e^{-i\omega_{1}t} \hat{\rho}_{ba} - \hbar \Omega_{ba} e^{i\omega_{1}t} \hat{\rho}_{ab} + \hbar \Omega_{ad} e^{-i\omega_{3}t} \hat{\rho}_{da} - \hbar \Omega_{da} e^{i\omega_{3}t} \hat{\rho}_{ad}) \\ &+ \Gamma_{ba} (\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{aa}) + \Gamma_{da} (\hat{\rho}_{dd} - \hat{\rho}_{aa}), \\ \dot{\hat{\rho}}_{bb} &= -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ba} e^{i\omega_{1}t} \hat{\rho}_{ab} - \hbar \Omega_{ab} e^{-i\omega_{1}t} \hat{\rho}_{ba} + \hbar \Omega_{bc} e^{-i\omega_{2}t} \hat{\rho}_{cb} - \hbar \Omega_{cb} e^{i\omega_{2}t} \hat{\rho}_{bc}) \\ &+ \Gamma_{ab} (\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{bb}) + \Gamma_{cb} (\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{bb}), \\ \dot{\hat{\rho}}_{cc} &= -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{cb} e^{i\omega_{2}t} \hat{\rho}_{bc} - \hbar \Omega_{bc} e^{-i\omega_{2}t} \hat{\rho}_{cb} + \hbar \Omega_{cd} e^{i\omega_{4}t} \hat{\rho}_{dc} - \hbar \Omega_{dc} e^{-i\omega_{4}t} \hat{\rho}_{cd}) \\ &+ \Gamma_{cb} (\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{cc}) + \Gamma_{cd} (\hat{\rho}_{dd} - \hat{\rho}_{cc}), \\ \dot{\hat{\rho}}_{dd} &= -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{da} e^{i\omega_{3}t} \hat{\rho}_{ad} - \hbar \Omega_{ad} e^{-i\omega_{3}t} \hat{\rho}_{da} + \hbar \Omega_{dc} e^{-i\omega_{4}t} \hat{\rho}_{cd} - \hbar \Omega_{cd} e^{i\omega_{4}t} \hat{\rho}_{dc}) \\ &+ \Gamma_{da} (\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{dd}) + \Gamma_{cd} (\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{dd}). \end{aligned}$$
(5.24)

Por otro lado, cuando m, n = a, b, c, d obtenemos para las coherencias

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\rho}}_{ba} &= (i\Delta_{ba} - \gamma_{ba})\hat{\rho}_{ba} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_{1}t}(\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{bb}) + \hbar\Omega_{bc}e^{-i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{ca} - \hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\hat{\rho}_{bd}], \\ \dot{\hat{\rho}}_{ca} &= (i\Delta_{ca} - \gamma_{ca})\hat{\rho}_{ca} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{ba} - \hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_{1}t}\hat{\rho}_{cb} + \hbar\Omega_{cd}e^{i\omega_{4}t}\hat{\rho}_{da} - \hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\hat{\rho}_{cd}], \\ \dot{\hat{\rho}}_{cb} &= (i\Delta_{cb} - \gamma_{cb})\hat{\rho}_{cb} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}(\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{cc}) - \hbar\Omega_{ab}e^{-i\omega_{1}t}\hat{\rho}_{ca} + \hbar\Omega_{cd}e^{i\omega_{4}t}\hat{\rho}_{db}], \\ \dot{\hat{\rho}}_{da} &= (i\Delta_{da} - \gamma_{da})\hat{\rho}_{da} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}(\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{dd}) + \hbar\Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}\hat{\rho}_{ca} - \hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_{1}t}\hat{\rho}_{db}], \\ \dot{\hat{\rho}}_{db} &= (i\Delta_{db} - \gamma_{db})\hat{\rho}_{db} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\hat{\rho}_{ab} + \hbar\Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}\hat{\rho}_{cb} - \hbar\Omega_{ab}e^{-i\omega_{1}t}\hat{\rho}_{da} - \hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{dc}], \\ \dot{\hat{\rho}}_{dc} &= (i\Delta_{dc} - \gamma_{dc})\hat{\rho}_{dc} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}(\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{dd}) + \hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\hat{\rho}_{ac} - \hbar\Omega_{bc}e^{-i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{db}]. \end{aligned}$$

Como se quiere describir al sistema físico en cuestión cuando se encuentra en **estado estacionario**, definimos la dependencia temporal de las coherencias de la forma

$$\hat{\rho}_{ba} = \tilde{\rho}_{ba} e^{i\omega_1 t}, \quad \hat{\rho}_{ca} = \tilde{\rho}_{ca} e^{i(\omega_1 + \omega_2)t}, \quad \hat{\rho}_{cb} = \tilde{\rho}_{cb} e^{i\omega_2 t},$$

$$\hat{\rho}_{da} = \tilde{\rho}_{da} e^{i\omega_3 t}, \quad \hat{\rho}_{db} = \tilde{\rho}_{db} e^{-i(\omega_1 - \omega_3)t}, \quad \hat{\rho}_{dc} = \tilde{\rho}_{dc} e^{-i\omega_4 t}.$$
(5.26)

De modo que, al sustituir las ecuaciones (5.26) en las ecuaciones (5.25) y (5.24) y aplicando la conservación de la energía en el 4WM

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4, \tag{5.27}$$

la cual define la frecuencia y el desentonamiento de la luz generada en la transición $|d\rangle-|c\rangle,$ obtenemos

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{\rho}}_{aa} &= -i(\Omega_{ab}\tilde{\rho}_{ba} - \Omega_{ba}\tilde{\rho}_{ab} + \Omega_{ad}\tilde{\rho}_{da} - \Omega_{da}\tilde{\rho}_{ad}) + \Gamma_{ba}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{aa}) + \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{aa}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{bb} &= -i(\Omega_{ba}\tilde{\rho}_{ab} - \Omega_{ab}\tilde{\rho}_{ba} + \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{cb} - \Omega_{cb}\tilde{\rho}_{bc}) + \Gamma_{ab}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}) + \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{bb}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{cc} &= -i(\Omega_{cb}\tilde{\rho}_{bc} - \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{cb} + \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{dc} - \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{cd}) + \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{cc}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{cc}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{dd} &= -i(\Omega_{da}\tilde{\rho}_{ad} - \Omega_{ad}\tilde{\rho}_{da} + \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{cd} - \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{dc}) + \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{dd}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{dd}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ba} &= (i\Delta_{ba} - \gamma_{ba})\tilde{\rho}_{ba} - i[\Omega_{ba}(\rho_{aa} - \rho_{bb}) - \Omega_{da}\tilde{\rho}_{bd} + \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{ca}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ca} &= (i\Delta_{ca} - \gamma_{ca})\tilde{\rho}_{ca} - i[\Omega_{cb}\tilde{\rho}_{bb} - \Omega_{cb}\tilde{\rho}_{cb} + \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{da} - \Omega_{da}\tilde{\rho}_{cd}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{da} &= (i\Delta_{cb} - \gamma_{cb})\tilde{\rho}_{cb} - i[\Omega_{cb}(\rho_{bb} - \rho_{cc}) - \Omega_{ab}\tilde{\rho}_{ca} + \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{db}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{da} &= (i\Delta_{da} - \gamma_{da})\tilde{\rho}_{da} - i[\Omega_{da}(\rho_{aa} - \rho_{dd}) + \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{ca} - \Omega_{ba}\tilde{\rho}_{db}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{db} &= (i\Delta_{db} - \gamma_{db})\tilde{\rho}_{db} - i[\Omega_{da}\tilde{\rho}_{ab} + \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{cb} - \Omega_{ab}\tilde{\rho}_{da} - \Omega_{cb}\tilde{\rho}_{dc}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{dc} &= (i\Delta_{dc} - \gamma_{dc})\tilde{\rho}_{dc} - i[\Omega_{dc}(\rho_{cc} - \rho_{dd}) + \Omega_{da}\tilde{\rho}_{ac} - \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{db}]. \end{aligned}$$

Definimos las partes real e imaginaria de las coherencias y frecuencias de Rabi como

$$\tilde{\rho}_{mn} = \operatorname{Re}\tilde{\rho}_{mn} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{mn},$$

$$\Omega_{mn} = \operatorname{Re}\Omega_{mn} + i\operatorname{Im}\Omega_{mn}.$$
(5.29)

Cuando m, n = a, b, c, d, sustituimos las ecuaciones (5.29) en (5.28), expandiendo el resultado y agrupando términos reales e imaginarios, obtenemos para las coherencias

$$\begin{split} \operatorname{Re}\dot{\tilde{\rho}}_{ba} + i\operatorname{Im}\dot{\tilde{\rho}}_{ba} &= -\Delta_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} - \gamma_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} + \operatorname{Im}\Omega_{ba}\rho_{aa} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\rho_{bb} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db} - \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} + \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} \\ &+ i(\Delta_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{bb} - \gamma_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\rho_{aa} + \operatorname{Re}\Omega_{ba}\rho_{bb} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} + \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca}), \\ \operatorname{Re}\dot{\tilde{\rho}}_{ca} + i\operatorname{Im}\dot{\tilde{\rho}}_{ca} &= -\Delta_{ca}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} \\ &- \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} \\ &- \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} \\ &- \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} \\ &- \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} \\ &- \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} \\ &- \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cc} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} \\ &- \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \gamma_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\rho_{cc} \\ &- \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \gamma_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\rho_{cc} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} - \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} \\ &+ i(\Delta_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cd} - \gamma_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cd} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\rho_{bb} + \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} \\ &+ i(\Delta_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cd} - \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} - \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\rho_{dd} \\ &- \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca} + \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} \\ \\ &+ i(\Delta_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} - \gamma_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Re}\Omega_{d}\operatorname{Re}\rho_{da} - \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{bb} \\ \\ &+ i(\Delta_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} \\ \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} \\ \\ &- \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} \\ \\ &-$$

Procediendo de manera análoga para las poblaciones, se tiene que

$$\begin{split} \dot{\tilde{\rho}}_{aa} &= \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} + \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} \\ &+ \Gamma_{ba}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{aa}) + \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{aa}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{bb} &= -\operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} + \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} + \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} \\ &+ \Gamma_{ab}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}) + \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{bb}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{cc} &= -\operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} - \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} - \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} \\ &+ \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{cc}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{cc}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{dd} &= -\operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} + \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} + \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} \\ &- \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} + \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} - \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} + \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} \\ &+ \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{dd}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{dd}). \end{split}$$
(5.31)

5.2.3. Efecto Doppler

Es importante mencionar que como estamos considerando un ensemble térmico de átomos, el movimiento de éstos es un factor que influye de manera considerable en el espectro de emisión. Éste movimiento atómico puede incluirse mediante el **desplazamiento Doppler** en los diversos desentonamientos para cada velocidad de la forma

$$\Delta_{ba} = \omega_{ba} - \omega_1 - \vec{k}_1 \cdot \vec{v} = \omega_{ba} - \omega_1 - |k_1| |v| \cos\theta_1,$$

$$\Delta_{cb} = \omega_{cb} - \omega_2 - \vec{k}_2 \cdot \vec{v} = \omega_{cb} - \omega_2 - |k_2| |v| \cos\theta_2,$$

$$\Delta_{cd} = \omega_{cd} - \omega_4 - \vec{k}_4 \cdot \vec{v} = \omega_{cd} - \omega_4 - |k_4| |v| \cos\theta_4.$$
(5.32)

Finalmente, se integran las ecuaciones ópticas de Bloch sobre una distribución de Maxwell-Boltzmann como sigue

$$\bar{\rho}_{nm} = \int \varrho(v)\tilde{\rho}_{nm}(v)dv, \qquad (5.33)$$

donde

$$\varrho(v) = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_b T}} \exp\left[-\frac{mv^2}{2k_b T}\right],\tag{5.34}$$

es el factor de Boltzmann dado en términos de la masa atómica m, la constante de Boltzmann k_b , la temperatura T y la velocidad de los átomos v [19].

5.2.4. Polarización no lineal

En algunos modelos teóricos es suficiente con calcular la polarización del medio considerando el límite del estado estacionario. Sin embargo, cuando en los sistemas físicos entran diversos procesos tales como 4WM y absorción, es necesario tener en cuenta la propagación de los campos electromagnéticos aplicados en el medio. Por consiguiente, para un campo electromagnético que se propaga en un medio atómico con polarización de la forma

$$P(z,t) = \sum_{i=1}^{4} [P_i(z)e^{-i\omega_i t} + \text{c.c.}], \qquad (5.35)$$

la ecuación de onda del campo eléctrico en la aproximación de la amplitud que cambia lentamente está dada por

$$\partial_z E_i = 2\pi |k_i| i e^{-ik_i z} P_i(z). \tag{5.36}$$

La polarización atómica en términos del operador densidad está dada por la relación $P = N\langle \mu \rangle = N \text{Tr}(\rho \mu)$, donde N es la densidad atómica y μ el momento dipolar. Cabe destacar que la polarización del medio que actúa como una fuente para el proceso de 4WM en éste modelo teórico es

$$P_4(z) = N\mu_{dc}\bar{\rho}_{dc},\tag{5.37}$$

con expresiones similares para las demás polarizaciones [19]. En éste trabajo se resuelve el conjunto de ecuaciones acopladas para los campos y los átomos a lo largo del ensemble atómico por lo que, es necesario conocer la forma explícita de dichos campos eléctricos lo cual se puede hacer si integramos la ecuación (5.36) entre una posición inicial z_0 y una final z_f . Sin embargo, lo que se busca es obtener una expresión del campo que podamos incluir en la solución numérica del modelo teórico. La manera de hacerlo es considerar la integración como una suma iterativa de la polarización dada en la posición inicial z_0 , con la cual se determina el valor de la polarización en la posición siguiente z_{j+1} multiplicada además por el intervalo de la posición Δz_j para un número de pasos n, esto es

$$E_i(z) = E_i - 2\pi |k_i| \sum_{j=0}^n e^{-ik_i z_j} P_i(z_{j+1}) \Delta z_j , \qquad (5.38)$$

donde el primer término de la ecuación (5.38) corresponde a la contribución lineal del campo eléctrico dada en términos de la intensidad de los láseres incidentes, mientras que el segundo término es la contribución no lineal al campo eléctrico. Cabe destacar que la ecuación (5.38)es la que se sustituye en las expresiones obtenidas para las frecuencias de Rabi, ecuaciones (5.12), (5.16) (5.17) y (5.18).

5.3. Parámetros físicos

A continuación se muestran los parámetros físicos pertinentes para llevar a cabo el estudio del 4WM los cuales están dados en el sistema CGS. Los momentos dipolares de las transiciónes se calcularon usando la expresión [102]

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\omega_0^3}{3\pi\epsilon_0\hbar c^3} \frac{2J+1}{2J'+1} |\langle J|e\mathbf{r}|J'\rangle|^2,$$
(5.39)

de la que se despejó el último término correspondiente a la magnitud del momento dipolar de la transición, obteniéndose

$$\begin{aligned} |\langle J|e\mathbf{r}|J'\rangle| &= \sqrt{\frac{1}{\tau} \frac{2J'+1}{2J+1} \frac{c^3}{\omega_0^3} 3\pi\epsilon_0 \hbar} \\ &= \sqrt{\Gamma \frac{2J'+1}{2J+1} \left(\frac{\lambda}{2\pi}\right)^3 3\pi\epsilon_0 \hbar}, \end{aligned}$$
(5.40)

donde Γ es la tasa de decaimiento total, λ la longitud de onda propia de la transición, ϵ_0 la permitividad eléctrica del vacío, \hbar la constante de Planck y J (J') el momento angular total del nivel inferior (superior). Los valores de cada uno de éstos parámetros están dados en las tablas (5.3), (5.7), (5.1), (B.2) y (B.3), respectivamente.

Por otro lado, el cálculo de las amplitudes lineales de los campos eléctricos asociados a los láseres incidentes realizó mediante la expresión dada en términos del sistema CGS

$$E_i = \sqrt{\frac{8\pi I_i}{c}},\tag{5.41}$$

con I_i la intensidad de los láseres.

Tabla 5.1: Constantes físicas.

Cantidad	Símbolo	Valor
Densidad atómica	Ν	$1.5 \times 10^{13} \text{ átomos/cm}^3$
Permitividad eléctrica del vacío	ϵ_0	$1/4\pi$
Carga del electrón	e	$4.8 \times 10^{-10} \text{ statC}$
Radio de Bohr	a_0	$5.29 \times 10^{-9} \text{ cm}$
Constante de Planck	\hbar	$1.05 \times 10^{-27} \text{ erg} \cdot \text{s}$
Velocidad de la luz	С	$3.0{ imes}10^{10}~{ m cm/s}$
Masa del ⁸⁵ Rb	m	$1.41 \times 10^{-22} \text{ g}$
Constante de Boltzmann	k_b	$1.38 \times 10^{-16} \text{ erg/K}$
Temperatura	T	$373.15 { m K}$

Tabla 5.2: Tiempos de vida de los niveles atómicos $|b, c, d\rangle$.

Símbolo	Valor en ns	Referencia
$ au_b$	27.8	[101]
$ au_c$	46.0	[101]
$ au_d$	26.4	[101]

Símbolo	Valor en GHz	
Γ_b	$1/ au_b$	
Γ_c	$1/\tau_c$	
Γ_d	$1/ au_d$	

Tabla 5.3: Tasas de decaimiento total de los niveles atómicos $|b, c, d\rangle$.

Tabla 5.4: Tasas de desfasamiento de coherencias.

Símbolo	Valor en GHz
γ_{ba}	Γ_b
γ_{da}	Γ_d
γ_{cb}	$(\Gamma_c + \Gamma_b)/2$
γ_{dc}	$(\Gamma_d + \Gamma_c)/2$

Tabla 5.5: Tasas de decaimiento espontáneo.

Símbolo	Valor en GHz	Referencia
Γ_{ba}	3.61×10^{-2}	[102]
Γ_{da}	3.81×10^{-2}	[102]
Γ_{cb}	3.21×10^{-2}	[101]
Γ_{cd}	3.21×10^{-2}	[101]

Tabla 5.6: Momentos dipolares.

Símbolo	Valor en stat $C \cdot cm$
μ_{ba}	$2.9931ea_0$
μ_{da}	$4.2275ea_0$
μ_{cb}	$5.2ea_0$
μ_{cd}	$8.4ea_0$

Símbolo	Valor en nm	Referencia
λ_1	795	[19]
λ_2	1324	[19]
λ_3	780	[19]
λ_4	1367	[19]

Tabla 5.7: Longitudes de onda de los haces

Tabla 5.8: Intensidades de los láseres incidentes

Símbolo	Valor en $erg \cdot s/cm^2$	Referencia
I_1	1×10^{5}	[19]
I_2	1×10^{5}	[19]
I_3	1×10^{4}	[19]

Capítulo 6

Resultados, conclusiones y perspectivas

6.1. Análisis de resultados

En esta sección se exponen los resultados obtenidos de la simulación de la dinámica de un gas de ⁸⁵Rb bajo las condiciones experimentales reportadas en el artículo [19] y se realiza un análisis de los mismos. En particular, se exponen resultados para el comportamiento dinámico de las poblaciones y coherencias del operador densidad del sistema bajo estudio. Se da importancia a las características de la polarización del campo electromagnético debidas al medio en función de la posición y la clase de velocidad, realizando una breve discusión al respecto.

6.1.1. Poblaciones

Inicialmente, el único estado poblado es el estado $|a\rangle$. La interacción con los láseres induce un decremento de la población en $|a\rangle$ hacia los niveles superiores en donde el decaimiento espontáneo conecta al nivel $|c\rangle$ con el nivel $|d\rangle$ y a su vez el nivel $|d\rangle$ se conecta con el nivel $|a\rangle$ tanto de manera espóntanea como inducida a través del láser semilla. Se puede observar una disminución rápida de la población del nivel $|a\rangle$. Para tiempos del orden de 60 ns en una posición de 1 cm y una velocidad de 3309 cm/s las poblaciones se estabilizan tomando valores de $\hat{\rho}_{aa} = \hat{\rho}_{bb} = \hat{\rho}_{cc} = \hat{\rho}_{dd} = 0.25$. Cabe destacar que el comportamiento dinámico de las poblaciones fluctúa para las poblaciones promedio dadas en función de la posición (fig.6.1 a) en contraste con las poblaciones promedio dadas en función de la velocidad (fig.6.1 b).



Figura 6.1: Gráficas de las Poblaciones vs Tiempo (ns). (a) poblaciones promedio en función de la posición a una velocidad de 3309 cm/s (b) poblaciones promedio en función de la velocidad a una posición de 1 cm.

El estado $|a\rangle$ pierde su población inicial rápidamente debido a la interacción con los láseres (fig.6.2 a), mientras que los estados $|b\rangle$, $|c\rangle \neq |d\rangle$ ganan población población debido a dicha interacción y al decaimiento espontáneo de los niveles superiores a los inferiores. Siendo el estado $|c\rangle$ el que gana población más lento (fig.6.2 c) en comparación con $|d\rangle$ que es el estado que gana población más rapido (fig.6.2 d). Sin embargo, el estado $|b\rangle$ es quien posee mayor población para tiempos finales (fig.6.2 b).



Figura 6.2: Gráficas de las Poblaciones vs Posición (cm) vs Tiempo (ns) proyectadas en el plano formado por la posición y el tiempo para una velocidad de 3309 cm/s. (a) ρ_{aa} , (b) ρ_{bb} , (c) ρ_{cc} y (d) ρ_{dd} .



Figura 6.3: Gráficas de las Poblaciones vs Velocidad (cm/s) vs Tiempo (ns) proyectadas en el plano formado por la velocidad y el tiempo para una posición de 1 cm. (a) ρ_{aa} , (b) ρ_{bb} , (c) ρ_{cc} y (d) ρ_{dd} .

Se observa que el comportamiento dinámico de las poblaciones cambian significativamente en función de la clase de velocidad. El estado $|a\rangle$ pierde mayor población para valores de la velocidad alrededor de 0 cm/s en comparación con los valores extremos del rango de velocidades a tiempos finales (fig.6.3 a), lo cual ocurre de manera similar para el estado $|b\rangle$ (fig.6.3 b). En contraste, el estado $|c\rangle$ adquiere mayor población para valores de la velocidad cercanos a 0 cm/s y menor población para los valores extremos de la velocidad a tiempos finales (fig.6.3 c). Finalmente, el estado $|d\rangle$ muestra una región de máxima población transcurridos 20 ns para una velocidad alrededor de 0 cm/s. Sin embargo, la población ganada por este estado para valores extremos de la velocidad es mínima a tiempos finales (fig.6.3 d). Por lo tanto, de estos resultados queda claro que el efecto Doppler considerado en los desentonamientos juega un papel importante en la ganancia y pérdida de población para cada uno de los estados.

6.1.2. Coherencias

Es bien sabido que algunas cantidades físicas (como es el caso de la polarización no lineal debida al medio estudiada en éste trabajo), están dadas en términos de las coherencias del operador densidad las cuales proveen información sobre dichas cantidades físicas por lo que, es preciso realizar un breve análisis sobre el comportamiento dinámico de éstas coherencias haciendo énfasis sobre los valores de la posición, clase de velocidades y tiempo para los que son máximas y mínimas. Demostrando además la importancia que tiene el efecto Doppler



Figura 6.4: Gráficas de las coherencias vs Posición (cm) vs Tiempo (ns) proyectadas en el plano formado por la posición y el tiempo para una velocidad de 3309 cm/s. (a) $\text{Re}\rho_{ba}$, (b) $\text{Im}\rho_{ba}$, (c) $\text{Re}\rho_{ca}$ y (d) $\text{Im}\rho_{ca}$.

considerado en los desentonamientos para el caso en que las coherencias están dadas en función de la clase de velocidad. De esta manera, se observa que la componente $\text{Re}\rho_{ba}$ es máxima alrededor de 0 ns pero decae rápidamente hasta obtener un valor mínimo a tiempos finales (fig.6.4 a). En contraste, la componente $\text{Im}\rho_{ba}$ muestra un decaimiento para las regiones de máximo valor y un aumento para las regiones de mínimo valor en el tiempo (fig.6.4 b). De manera similar a la componente $\text{Re}\rho_{ba}$, la componente $\text{Re}\rho_{ca}$ es máxima para valores iniciales del tiempo y decae abruptamente para tiempos finales (fig.6.4 c). Finalmente, la componente $\text{Im}\rho_{ca}$ es máxima a 0 ns, decae rápidamente adquiriendo su valor mínimo alrededor de 10 ns y aumenta a partir de 50 ns (fig.6.4 d).

La componente $\text{Re}\rho_{cb}$ es máxima alrededor de 9 ns y decae relativamente rápido hasta su mínimo valor por debajo de cero para tiempos finales (fig.6.5 a). De manera similar, la componente $\text{Im}\rho_{cb}$ es máxima alrededor de 12 ns y decae paulatinamente (fig.6.5 b). Por otro lado, $\text{Re}\rho_{da}$ es mínima alrededor de 15 ns mientras que es máxima alrededor de 35 ns (fig.6.5 c). Finalmente, $\text{Im}\rho_{da}$ es mínima alrededor de 8 ns, máxima para 25 ns y adquiere valores intermedios a partir de 40 ns (fig.6.5 d).



Figura 6.5: Gráficas de las coherencias vs Posición (cm) vs Tiempo (ns) proyectadas en el plano formado por la posición y el tiempo para una velocidad de 3309 cm/s. (a) $\text{Re}\rho_{cb}$, (b) $\text{Im}\rho_{cb}$, (c) $\text{Re}\rho_{da}$ y (d) $\text{Im}\rho_{da}$.

La componente $\text{Re}\rho_{db}$ posee valores máximos y mínimos hasta 20 ns. A partir de éste valor del tiempo muestra un comportamiento relativamente estable con dos regiones de máximo valor alrededor de 35 y 40 ns (fig.6.6 a). Se observa un comportamiento análogo para $\text{Re}\rho_{dc}$ (fig.6.6 c). Por otro lado, $\text{Im}\rho_{db}$ inicialmente es mínima, luego es máxima alrededor de 19 ns y decae para tiempos finales (fig.6.6 b). De manera similar, $\text{Im}\rho_{dc}$ inicialmente es mínima y es máxima alrededor de 19 ns (fig.6.6 d).



Figura 6.6: Gráficas de las coherencias vs Posición (cm) vs Tiempo (ns) proyectadas en el plano formado por la posición y el tiempo para una velocidad de 3309 cm/s. (a) $\text{Re}\rho_{db}$, (b) $\text{Im}\rho_{db}$, (c) $\text{Re}\rho_{dc}$ y (d) $\text{Im}\rho_{dc}$.

Se observa que $\text{Re}\rho_{ba}$ es máxima para valores positivos de la velocidad en contraste con los valores negativos para los cuales es mínima, la que a su vez decae abruptamente en el tiempo (fig.6.7 a). Se puede apreciar un comportamiento similar para Im ρ_{ba} , la cual es máxima para valores positivos de la velocidad y mínima para valores negativos y decae paulatinamente en el tiempo (fig.6.7 b). Por otro lado, $\text{Re}\rho_{ca}$ es máxima inicialmente para valores positivos de la velocidad que decae en el tiempo tiende a permanecer máxima para valores negativos de la misma hasta un tiempo de 25 ns, mientras que a partir de 20 ns para velocidades positivas tiende a ser mínima en el tiempo (fig.6.7 c). Finalmente, Im ρ_{ca} es



Figura 6.7: Gráficas de las coherencias vs Velocidad (cm/s) vs Tiempo (ns) proyectadas en el plano formado por la velocidad y el tiempo para una posición de 1 cm. (a) $\text{Re}\rho_{ba}$, (b) $\text{Im}\rho_{ba}$, (c) $\text{Re}\rho_{ca}$ y (d) $\text{Im}\rho_{ca}$.

mínima alrededor de 10 ns para valores negativos de la velocidad, estabilizándose a partir de 30 ns y siendo máxima a tiempos finales (fig.6.7 d).

Se puede apreciar que $\text{Re}\rho_{cb}$ es máxima para valores positivos de la velocidad y disminuye para valores negativos de la misma hasta un tiempo de 25 ns, a partir de aquí el decaimiento en el tiempo de ésta componente es similar tanto para valores positivos como negativos de la velocidad, mostrando a su vez que ésta es mínima alrededor de 0 cm/s (fig.6.8 a). Análogamente, la componente $\text{Im}\rho_{cb}$ es máxima inicialmente para valores positivos de la velocidad la que a su vez disminuye para valores negativos de la misma y decae paulatinamente en el tiempo (fig.6.8 b).



Figura 6.8: Gráficas de las coherencias vs Velocidad (cm/s) vs Tiempo (ns) proyectadas en el plano formado por la velocidad y el tiempo para una posición de 1 cm. (a) $\text{Re}\rho_{cb}$, (b) $\text{Im}\rho_{cb}$, (c) $\text{Re}\rho_{da}$ y (d) $\text{Im}\rho_{da}$.

Por otro lado, el comportamiento dinámico cambia de manera significativa para $\text{Re}\rho_{da}$ con respecto a la clase de velocidad la cual muestra dos regiones simétricas en las que es máxima para valores negativos de la velocidad y mínima para valores positivos de dicha velocidad (fig.6.8 c). Finalmente, $\text{Im}\rho_{da}$ inicialmente muestra una región en la que es mínima para todo el rango de velocidades hasta un tiempo de 25 ns, a partir de este valor temporal esta componente muestra dos regiones simétricas en la que es máxima para valores extremos del rango de velocidades (fig.6.8 d). Se observa que $\text{Re}\rho_{db}$ posee una estructura simétrica en la que es máxima para valores negativos de la velocidad y mínima para valores positivos de la misma, a su vez que tanto la parte máxima como la mínima decaen en el tiempo tendiendo a 0 cm/s (fig.6.9 a). Por otro lado, $\text{Im}\rho_{db}$ muestra regiones intercaladas en la que es mínima para todo el rango de velocidades pero que decae en el tiempo, mientras que las regiones en la que es máxima son más notables alrededor de 1000 cm/s, mostrando a su vez regiones simetrícas para valores extremos de la velocidad. De nuevo se observa una tendencia hacia 0 cm/s (fig.6.9 b).



Figura 6.9: Gráficas de las coherencias vs Velocidad (cm/s) vs Tiempo (ns) proyectadas en el plano formado por la velocidad y el tiempo para una posición de 1 cm. (a) $\text{Re}\rho_{db}$, (b) $\text{Im}\rho_{db}$.

6.1.3. Polarizaciones

Como se mencionó en la sección anterior, es posible obtener algunas cantidades físicas en términos de los elementos del operador densidad. En éste trabajo, la cantidad física considerada es la polarización no lineal debida al medio dada en términos de las coherencias mediante la relación $P_{ij} = N \mu_{ij} \rho_{ij}$, la cual es analizada en ésta sección en función de la clase de velocidad y la posición. De esta manera, se puede apreciar que la polarización no lineal debida al medio asociada a la transición atómica $|b\rangle - |a\rangle$ (P_{ba}) no es mínima exactamente sobre 0 cm/s debido al efecto Doppler de la velocidad considerado en el desentonamiento Δ_{ba} . Además, se observa que ésta polarización es máxima entre 2000 y 3000 cm/s, por lo que ésta clase de velocidades favorece al aumento de la polarización de dicha transición atómica (Fig.6.10 a). Análogamente, la polarización P_{cb} es máxima entre 2000 y 3000 cm/s pero es mínima entre -1000 y -2000 cm/s (Fig.6.10 c). Por otro lado, la polarización P_{da} es cero exactamente en 0 cm/s debido a que se escogió que $\Delta_{da} = 0$ GHz, luego por efecto Doppler de velocidades dicha polarización es máxima para un rango de velocidades entre [1000,2000] y [-1000,-2000] cm/s (Fig.6.10 b). Finalmente, teniendo en cuenta que para la transición $|d\rangle - |c\rangle$ no hay un campo de acoplamiento externo, se obtuvo que P_{dc} es máxima alrededor de 0 cm/s con un lígero corrimiento hacia valores positivos de la velocidad debido a efecto Doppler, mientras que para valores por debajo de -500 cm/s es mínima en todo los valores de la posición (Fig.6.10 d).

A diferencia de los resultados reportados en el artículo [19] para P_{dc} en los que se expone un decaimiento suave de dicha polarización centrada en 0 cm/s para un rango de velocidades de [-2000,2000] cm/s, en éste trabajo se encontró que al considerar un rango de velocidades más amplio las polarizaciones para todas las transiciones presentan una estructura oscilatoria con diferentes picos de máximos y mínimos para distintos valores de la clase de velocidad (Fig.6.11).



Figura 6.10: Gráficas de las Polarizaciones (u.a.) vs Velocidad (cm/s) vs Posición (cm) proyectadas en el plano formado por la velocidad y la posición para un tiempo de 40 ns. (a) P_{ba} , (b) P_{da} , (c) P_{cb} y (d) P_{dc} .


Figura 6.11: Gráficas de las Polarizaciones (u.a.) vs Velocidad (cm/s) vs Posición (cm) para un tiempo de 40 ns. (a) P_{ba} , (b) P_{da} , (c) P_{cb} y (d) P_{dc} .

6.1.4. Campos eléctricos

Se obtuvo la generación de un campo eléctrico en la transición $|d\rangle - |c\rangle$ para la cual no existe un láser de acoplamiento externo como ocurre con las otras transiciones, se puede apreciar que éste campo E_{dc} aumenta a lo largo de la celda que contiene el gas atómico hasta estabilizarse (fig.6.12 b). En contraste, se observa que el campo eléctrico asociado a la transición $|d\rangle - |a\rangle$ para la cual si existe un láser de acoplamiento externo, decrece a lo largo de la celda. Cabe resaltar que el decrecimiento de éste campo E_{da} para un tiempo de 30 ns llega hasta un valor de 0.95 para una posición de 1 cm (fig6.12 a).



Figura 6.12: Gráficas de las amplitudes normalizadas de los campos eléctricos vs Posición (cm) para un tiempo de 30 ns. (a) Amplitud del campo eléctrico correspondiente a la transición $|d\rangle - |a\rangle$, (b) Amplitud del campo eléctrico correspondiente a la transición $|d\rangle - |c\rangle$.

6.2. Conclusiones

Se obtuvo la generación de un nuevo campo eléctrico no lineal (E_4) en un vapor atómico de ⁸⁵Rb modelado como un sistema atómico de cuatro niveles en configuración diamante, lo cual se llevó a cabo utilizando las ecuaciones ópticas de Bloch derivadas a partir de la ecuación maestra de Lindblad dadas en términos de parámetros físicos efectivos las cuales se resolvieron mediante simulación numérica en lenguaje de programación Fortran, teniendo en cuenta las condiciones teóricas y experimentales del artículo [19]. Cabe destacar que los resultados obtenidos en éste trabajo son comparables con los del artículo mencionado anteriormente, con la diferencia de que nuestros resultados proveen mayor información sobre las polarizaciones en éste tipo de sistemas. Además, se demostró que el comportamiento dinámico de las poblaciones y coherencias cambian en el espacio y la velocidad al considerar las frecuencias de Rabi en función de la posición dadas en términos de los campos eléctricos lineal y no lineal y el efecto Doppler de velocidades incluido en los desentonamientos, respectivamente.

6.3. Perspectivas

- Utilizar haces de luz estructurados, en particular ondas de Bessel.
- Aplicar una trampa magneto óptica (MOT) para conseguir que una mayor cantidad de átomos interactúen con los láseres.
- Considerar el hamiltoniano de interacción entre el sistema y el campo magnético externo en el caso cuando se aplica la MOT.
- Agregar las proyecciones de los momentos magnéticos asociados a la estructura hiperfina en la base del estado del sistema.

Apéndice A

Derivación de las ecuaciones ópticas de Bloch

En éste apéndice se realiza la derivación detallada de las ecuaciones ópticas de Bloch de las poblaciones y coherencias.

A.1. Poblaciones

De la ecuación (5.22)

$$\dot{\hat{\rho}}_{ll} = -\sum_{n} \Gamma_{nl} \hat{\rho}_{ll} + \sum_{n} \Gamma_{nl} \hat{\rho}_{nn} - \frac{i}{\hbar} \sum_{m} (\hbar \Omega_{lm} \hat{\rho}_{ml} - \hat{\rho}_{lm} \hbar \Omega_{ml}),$$

cuando l = a tenemos que

$$\dot{\hat{\rho}}_{aa} = -\sum_{n=a}^{d} \Gamma_{na} \hat{\rho}_{aa} + \sum_{n=a}^{d} \Gamma_{na} \hat{\rho}_{nn} - \frac{i}{\hbar} \sum_{m=a}^{d} (\hbar \Omega_{am} \hat{\rho}_{ma} - \hat{\rho}_{am} \hbar \Omega_{ma})
= -\Gamma_{aa} \hat{\rho}_{aa} + \Gamma_{aa} \hat{\rho}_{aa} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{aa} \hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{aa} \hbar \Omega_{aa})
- \Gamma_{ba} \hat{\rho}_{aa} + \Gamma_{ba} \hat{\rho}_{bb} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ab} \hat{\rho}_{ba} - \hat{\rho}_{ab} \hbar \Omega_{ba})
- \Gamma_{ca} \hat{\rho}_{aa} + \Gamma_{ca} \hat{\rho}_{cc} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ac} \hat{\rho}_{ca} - \hat{\rho}_{ac} \hbar \Omega_{ca})
- \Gamma_{da} \hat{\rho}_{aa} + \Gamma_{da} \hat{\rho}_{dd} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ad} \hat{\rho}_{da} - \hat{\rho}_{ad} \hbar \Omega_{da}).$$
(A.1)

Puesto que las cantidades Γ_{aa} y Ω_{aa} no tienen sentido físico y no existe un láser de acoplamiento entre los niveles $|a\rangle y |c\rangle$, entonces

$$\dot{\hat{\rho}}_{aa} = -\frac{\imath}{\hbar} (\hbar \Omega_{ab} e^{-i\omega_1 t} \hat{\rho}_{ba} - \hat{\rho}_{ab} \hbar \Omega_{ba} e^{i\omega_1 t} + \hbar \Omega_{ad} e^{-i\omega_3 t} \hat{\rho}_{da} - \hat{\rho}_{ad} \hbar \Omega_{da} e^{i\omega_3 t}) + \Gamma_{ba} (\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{aa}) + \Gamma_{da} (\hat{\rho}_{dd} - \hat{\rho}_{aa}).$$
(A.2)

Procediendo de manera análoga cuando l=b,

$$\dot{\hat{\rho}}_{bb} = -\sum_{n=a}^{d} \Gamma_{nb} \hat{\rho}_{bb} + \sum_{n=a}^{d} \Gamma_{nb} \hat{\rho}_{nn} - \frac{i}{\hbar} \sum_{m=a}^{d} (\hbar \Omega_{bm} \hat{\rho}_{mb} - \hat{\rho}_{bm} \hbar \Omega_{mb})$$

$$= -\Gamma_{ab} \hat{\rho}_{bb} + \Gamma_{ab} \hat{\rho}_{aa} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ba} \hat{\rho}_{ab} - \hat{\rho}_{ba} \hbar \Omega_{ab})$$

$$- \Gamma_{bb} \hat{\rho}_{bb} + \Gamma_{bb} \hat{\rho}_{bb} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{bb} \hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{bb} \hbar \Omega_{bb})$$

$$- \Gamma_{cb} \hat{\rho}_{bb} + \Gamma_{cb} \hat{\rho}_{cc} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{bc} \hat{\rho}_{cb} - \hat{\rho}_{bc} \hbar \Omega_{cb})$$

$$- \Gamma_{db} \hat{\rho}_{bb} + \Gamma_{db} \hat{\rho}_{dd} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{bd} \hat{\rho}_{db} - \hat{\rho}_{bd} \hbar \Omega_{db}).$$
(A.3)

Teniendo en cuenta que tampo co existe un láser que acople los niveles $|b\rangle$ y $|d\rangle,$ obtenemos

$$\dot{\hat{\rho}}_{bb} = -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ba} e^{i\omega_1 t} \hat{\rho}_{ab} - \hat{\rho}_{ba} \hbar \Omega_{ab} e^{-i\omega_1 t} + \hbar \Omega_{bc} e^{-i\omega_2 t} \hat{\rho}_{cb} - \hat{\rho}_{bc} \hbar \Omega_{cb} e^{i\omega_2 t}) + \Gamma_{ab} (\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{bb}) + \Gamma_{cb} (\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{bb}).$$
(A.4)

Cuando l = c,

$$\dot{\hat{\rho}}_{cc} = -\sum_{n=a}^{d} \Gamma_{nc} \hat{\rho}_{cc} + \sum_{n=a}^{d} \Gamma_{nc} \hat{\rho}_{nn} - \frac{i}{\hbar} \sum_{m=a}^{d} (\hbar \Omega_{cm} \hat{\rho}_{mc} - \hat{\rho}_{cm} \hbar \Omega_{mc})
= -\Gamma_{ac} \hat{\rho}_{cc} + \Gamma_{ac} \hat{\rho}_{aa} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ca} \hat{\rho}_{ac} - \hat{\rho}_{ca} \hbar \Omega_{ac})
- \Gamma_{bc} \hat{\rho}_{cc} + \Gamma_{bc} \hat{\rho}_{bb} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{cb} \hat{\rho}_{bc} - \hat{\rho}_{cb} \hbar \Omega_{bc})
- \Gamma_{cc} \hat{\rho}_{cc} + \Gamma_{cc} \hat{\rho}_{cc} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{cc} \hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{cc} \hbar \Omega_{cc})
- \Gamma_{dc} \hat{\rho}_{cc} + \Gamma_{dc} \hat{\rho}_{dd} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{cd} \hat{\rho}_{dc} - \hat{\rho}_{cd} \hbar \Omega_{dc}).$$
(A.5)

Por lo tanto,

$$\dot{\hat{\rho}}_{cc} = -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{cb} e^{i\omega_2 t} \hat{\rho}_{bc} - \hat{\rho}_{cb} \hbar \Omega_{bc} e^{-i\omega_2 t} + \hbar \Omega_{cd} e^{i\omega_4 t} \hat{\rho}_{dc} - \hat{\rho}_{cd} \hbar \Omega_{dc} e^{-i\omega_4 t}) + \Gamma_{cb} (\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{cc}) + \Gamma_{cd} (\hat{\rho}_{dd} - \hat{\rho}_{cc}).$$
(A.6)

Cuando l = d,

$$\dot{\hat{\rho}}_{dd} = -\sum_{n=a}^{d} \Gamma_{nd} \hat{\rho}_{dd} + \sum_{n=a}^{d} \Gamma_{nd} \hat{\rho}_{nn} - \frac{i}{\hbar} \sum_{m=a}^{d} (\hbar \Omega_{dm} \hat{\rho}_{md} - \hat{\rho}_{dm} \hbar \Omega_{md})$$

$$= -\Gamma_{ad} \hat{\rho}_{dd} + \Gamma_{ad} \hat{\rho}_{aa} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{da} \hat{\rho}_{ad} - \hat{\rho}_{da} \hbar \Omega_{ad})$$

$$- \Gamma_{db} \hat{\rho}_{dd} + \Gamma_{db} \hat{\rho}_{bb} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{db} \hat{\rho}_{bd} - \hat{\rho}_{db} \hbar \Omega_{bd})$$

$$- \Gamma_{cd} \hat{\rho}_{dd} + \Gamma_{cd} \hat{\rho}_{cc} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{dc} \hat{\rho}_{cd} - \hat{\rho}_{dc} \hbar \Omega_{cd})$$

$$- \Gamma_{dd} \hat{\rho}_{dd} + \Gamma_{dd} \hat{\rho}_{dd} - \frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{dd} \hat{\rho}_{dd} - \hat{\rho}_{dd} \hbar \Omega_{dd}).$$
(A.7)

Finalmente,

$$\dot{\hat{\rho}}_{dd} = -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{da} e^{i\omega_3 t} \hat{\rho}_{ad} - \hat{\rho}_{da} \hbar \Omega_{ad} e^{-i\omega_3 t} + \hbar \Omega_{dc} e^{-i\omega_4 t} \hat{\rho}_{cd} - \hat{\rho}_{dc} \hbar \Omega_{cd} e^{i\omega_4 t})$$

$$+ \Gamma_{da} (\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{dd}) + \Gamma_{cd} (\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{dd}).$$
(A.8)

En resumen, las ecuaciones ópticas de Bloch correspondientes a las poblaciones son

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\rho}}_{aa} &= -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ab} e^{-i\omega_1 t} \hat{\rho}_{ba} - \hbar \Omega_{ba} e^{i\omega_1 t} \hat{\rho}_{ab} + \hbar \Omega_{ad} e^{-i\omega_3 t} \hat{\rho}_{da} - \hbar \Omega_{da} e^{i\omega_3 t} \hat{\rho}_{ad}) \\ &+ \Gamma_{ba} (\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{aa}) + \Gamma_{da} (\hat{\rho}_{dd} - \hat{\rho}_{aa}) \\ \dot{\hat{\rho}}_{bb} &= -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{ba} e^{i\omega_1 t} \hat{\rho}_{ab} - \hbar \Omega_{ab} e^{-i\omega_1 t} \hat{\rho}_{ba} + \hbar \Omega_{bc} e^{-i\omega_2 t} \hat{\rho}_{cb} - \hbar \Omega_{cb} e^{i\omega_2 t} \hat{\rho}_{bc}) \\ &+ \Gamma_{ab} (\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{bb}) + \Gamma_{cb} (\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{bb}) \\ \dot{\hat{\rho}}_{cc} &= -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{cb} e^{i\omega_2 t} \hat{\rho}_{bc} - \hbar \Omega_{bc} e^{-i\omega_2 t} \hat{\rho}_{cb} + \hbar \Omega_{cd} e^{i\omega_4 t} \hat{\rho}_{dc} - \hbar \Omega_{dc} e^{-i\omega_4 t} \hat{\rho}_{cd}) \\ &+ \Gamma_{cb} (\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{cc}) + \Gamma_{cd} (\hat{\rho}_{dd} - \hat{\rho}_{cc}) \\ \dot{\hat{\rho}}_{dd} &= -\frac{i}{\hbar} (\hbar \Omega_{da} e^{i\omega_3 t} \hat{\rho}_{ad} - \hbar \Omega_{ad} e^{-i\omega_3 t} \hat{\rho}_{da} + \hbar \Omega_{dc} e^{-i\omega_4 t} \hat{\rho}_{cd} - \hbar \Omega_{cd} e^{i\omega_4 t} \hat{\rho}_{dc}) \\ &+ \Gamma_{da} (\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{dd}) + \Gamma_{cd} (\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{dd}). \end{aligned}$$

A.2. Coherencias

Retomando la ecuación (5.23)

$$\dot{\hat{\rho}}_{mn} = (i\Delta_{mn} - \gamma_{mn})\hat{\rho}_{mn} - \frac{i}{\hbar}\sum_{\nu}(\hbar\Omega_{m\nu}\hat{\rho}_{\nu n} - \hat{\rho}_{m\nu}\hbar\Omega_{\nu n}),$$

cuando m, n = b, a tenemos que

$$\dot{\hat{\rho}}_{ba} = (i\Delta_{ba} - \gamma_{ba})\hat{\rho}_{ba} - \frac{i}{\hbar}\sum_{\nu=a}^{d}(\hbar\Omega_{b\nu}\hat{\rho}_{\nu a} - \hat{\rho}_{b\nu}\hbar\Omega_{\nu a})$$

$$= (i\Delta_{ba} - \gamma_{ba})\hat{\rho}_{ba} - \frac{i}{\hbar}[(\hbar\Omega_{ba}\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{ba}\hbar\Omega_{aa})$$

$$+ (\hbar\Omega_{bb}\hat{\rho}_{ba} - \hat{\rho}_{bb}\hbar\Omega_{ba}) + (\hbar\Omega_{bc}\hat{\rho}_{ca} - \hat{\rho}_{bc}\hbar\Omega_{ca}) + (\hbar\Omega_{bd}\hat{\rho}_{da} - \hat{\rho}_{bd}\hbar\Omega_{da})].$$
(A.10)

Recordando que no consideramos láseres que acoplen las transiciones $|c\rangle-|a\rangle$ y $|b\rangle-|d\rangle,$ entonces

$$\dot{\hat{\rho}}_{ba} = (i\Delta_{ba} - \gamma_{ba})\hat{\rho}_{ba} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_1 t}(\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{bb}) + \hbar\Omega_{bc}e^{-i\omega_2 t}\hat{\rho}_{ca} - \hat{\rho}_{bd}\hbar\Omega_{da}e^{i\omega_3 t}].$$
(A.11)

Procediendo de manera análoga cuando m,n=c,a

$$\dot{\hat{\rho}}_{ca} = (i\Delta_{ca} - \gamma_{ca})\hat{\rho}_{ca} - \frac{i}{\hbar}\sum_{\nu=a}^{d}(\hbar\Omega_{c\nu}\hat{\rho}_{\nu a} - \hat{\rho}_{c\nu}\hbar\Omega_{\nu a})$$

$$= (i\Delta_{ca} - \gamma_{ca})\hat{\rho}_{ca} - \frac{i}{\hbar}[(\hbar\Omega_{ca}\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{ca}\hbar\Omega_{aa})$$

$$+ (\hbar\Omega_{cb}\hat{\rho}_{ba} - \hat{\rho}_{cb}\hbar\Omega_{ba}) + (\hbar\Omega_{cc}\hat{\rho}_{ca} - \hat{\rho}_{cc}\hbar\Omega_{ca}) + (\hbar\Omega_{cd}\hat{\rho}_{da} - \hat{\rho}_{cd}\hbar\Omega_{da})].$$
(A.12)

Por consiguiente,

$$\dot{\hat{\rho}}_{ca} = (i\Delta_{ca} - \gamma_{ca})\hat{\rho}_{ca} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_2 t}\hat{\rho}_{ba} - \hat{\rho}_{cb}\hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_1 t} + \hbar\Omega_{cd}e^{i\omega_4 t}\hat{\rho}_{da} - \hat{\rho}_{cd}\hbar\Omega_{da}e^{i\omega_3 t}].$$
(A.13)

Cuando $\boldsymbol{m},\boldsymbol{n}=\boldsymbol{c},\boldsymbol{b}$

$$\dot{\hat{\rho}}_{cb} = (i\Delta_{cb} - \gamma_{cb})\hat{\rho}_{cb} - \frac{i}{\hbar}\sum_{\nu=a}^{d}(\hbar\Omega_{c\nu}\hat{\rho}_{\nu b} - \hat{\rho}_{c\nu}\hbar\Omega_{\nu b})$$

$$= (i\Delta_{cb} - \gamma_{cb})\hat{\rho}_{cb} - \frac{i}{\hbar}[(\hbar\Omega_{ca}\hat{\rho}_{ab} - \hat{\rho}_{ca}\hbar\Omega_{ab})$$

$$+ (\hbar\Omega_{cb}\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{cb}\hbar\Omega_{bb}) + (\hbar\Omega_{cc}\hat{\rho}_{cb} - \hat{\rho}_{cc}\hbar\Omega_{cb}) + (\hbar\Omega_{cd}\hat{\rho}_{db} - \hat{\rho}_{cd}\hbar\Omega_{db})].$$
(A.14)

$$\therefore \dot{\hat{\rho}}_{cb} = (i\Delta_{cb} - \gamma_{cb})\hat{\rho}_{cb} - \frac{i}{\hbar} [\hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_2 t}(\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{cc}) - \hat{\rho}_{ca}\hbar\Omega_{ab}e^{-i\omega_1 t} + \hbar\Omega_{cd}e^{i\omega_4 t}\hat{\rho}_{db}].$$
(A.15)

Cuando m, n = d, a

$$\dot{\hat{\rho}}_{da} = (i\Delta_{da} - \gamma_{da})\hat{\rho}_{da} - \frac{i}{\hbar}\sum_{\nu=a}^{d}(\hbar\Omega_{d\nu}\hat{\rho}_{\nu a} - \hat{\rho}_{d\nu}\hbar\Omega_{\nu a})$$

$$= (i\Delta_{da} - \gamma_{da})\hat{\rho}_{da} - \frac{i}{\hbar}[(\hbar\Omega_{da}\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{da}\hbar\Omega_{aa})$$

$$+ (\hbar\Omega_{db}\hat{\rho}_{ba} - \hat{\rho}_{db}\hbar\Omega_{ba}) + (\hbar\Omega_{dc}\hat{\rho}_{ca} - \hat{\rho}_{dc}\hbar\Omega_{ca}) + (\hbar\Omega_{dd}\hat{\rho}_{da} - \hat{\rho}_{dd}\hbar\Omega_{da})].$$
(A.16)

 $\therefore \dot{\hat{\rho}}_{da} = (i\Delta_{da} - \gamma_{da})\hat{\rho}_{da} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{da}e^{i\omega_3 t}(\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{dd}) + \hat{\rho}_{ca}\hbar\Omega_{dc}e^{-i\omega_4 t} - \hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_1 t}\hat{\rho}_{db}]. \quad (A.17)$

Cuando $\boldsymbol{m},\boldsymbol{n}=\boldsymbol{d},\boldsymbol{b}$

$$\dot{\hat{\rho}}_{db} = (i\Delta_{db} - \gamma_{db})\hat{\rho}_{db} - \frac{i}{\hbar}\sum_{\nu=a}^{d}(\hbar\Omega_{d\nu}\hat{\rho}_{\nu b} - \hat{\rho}_{d\nu}\hbar\Omega_{\nu b})$$

$$= (i\Delta_{db} - \gamma_{db})\hat{\rho}_{db} - \frac{i}{\hbar}[(\hbar\Omega_{da}\hat{\rho}_{ab} - \hat{\rho}_{da}\hbar\Omega_{ab})$$

$$+ (\hbar\Omega_{db}\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{db}\hbar\Omega_{bb}) + (\hbar\Omega_{dc}\hat{\rho}_{cb} - \hat{\rho}_{dc}\hbar\Omega_{cb}) + (\hbar\Omega_{dd}\hat{\rho}_{db} - \hat{\rho}_{dd}\hbar\Omega_{db})].$$
(A.18)

 $\therefore \dot{\hat{\rho}}_{db} = (i\Delta_{db} - \gamma_{db})\hat{\rho}_{db} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\hat{\rho}_{ab} + \hat{\rho}_{cb}\hbar\Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t} - \hbar\Omega_{ab}e^{-i\omega_{1}t}\hat{\rho}_{da} - \hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{dc}].$ (A.19) Cuando m, n = d, c

$$\dot{\hat{\rho}}_{dc} = (i\Delta_{dc} - \gamma_{dc})\hat{\rho}_{dc} - \frac{i}{\hbar}\sum_{\nu=a}^{d}(\hbar\Omega_{d\nu}\hat{\rho}_{\nu c} - \hat{\rho}_{d\nu}\hbar\Omega_{\nu c})$$

$$= (i\Delta_{dc} - \gamma_{dc})\hat{\rho}_{dc} - \frac{i}{\hbar}[(\hbar\Omega_{da}\hat{\rho}_{ac} - \hat{\rho}_{da}\hbar\Omega_{ac})$$

$$+ (\hbar\Omega_{db}\hat{\rho}_{bc} - \hat{\rho}_{db}\hbar\Omega_{bc}) + (\hbar\Omega_{dc}\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{dc}\hbar\Omega_{cc}) + (\hbar\Omega_{dd}\hat{\rho}_{dc} - \hat{\rho}_{dd}\hbar\Omega_{dc})].$$

$$\therefore \dot{\hat{\rho}}_{dc} = (i\Delta_{dc} - \gamma_{dc})\hat{\rho}_{dc} - \frac{i}{\hbar}[\hbar\Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}(\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{dd}) + \hat{\rho}_{ac}\hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t} - \hbar\Omega_{bc}e^{-i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{db}]. \quad (A.21)$$

En resumen, las ecuaciones ópticas de Bloch correspondientes a las coherencias son

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\rho}}_{ba} &= (i\Delta_{ba} - \gamma_{ba})\hat{\rho}_{ba} - \frac{i}{\hbar} [\hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_{1}t}(\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{bb}) + \hbar\Omega_{bc}e^{-i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{ca} - \hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\hat{\rho}_{bd}] \\ \dot{\hat{\rho}}_{ca} &= (i\Delta_{ca} - \gamma_{ca})\hat{\rho}_{ca} - \frac{i}{\hbar} [\hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{ba} - \hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_{1}t}\hat{\rho}_{cb} + \hbar\Omega_{cd}e^{i\omega_{4}t}\hat{\rho}_{da} - \hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\hat{\rho}_{cd}] \\ \dot{\hat{\rho}}_{cb} &= (i\Delta_{cb} - \gamma_{cb})\hat{\rho}_{cb} - \frac{i}{\hbar} [\hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}(\hat{\rho}_{bb} - \hat{\rho}_{cc}) - \hbar\Omega_{ab}e^{-i\omega_{1}t}\hat{\rho}_{ca} + \hbar\Omega_{cd}e^{i\omega_{4}t}\hat{\rho}_{db}] \\ \dot{\hat{\rho}}_{da} &= (i\Delta_{da} - \gamma_{da})\hat{\rho}_{da} - \frac{i}{\hbar} [\hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}(\hat{\rho}_{aa} - \hat{\rho}_{dd}) + \hbar\Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}\hat{\rho}_{ca} - \hbar\Omega_{ba}e^{i\omega_{1}t}\hat{\rho}_{db}] \\ \dot{\hat{\rho}}_{db} &= (i\Delta_{db} - \gamma_{db})\hat{\rho}_{db} - \frac{i}{\hbar} [\hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\hat{\rho}_{ab} + \hbar\Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}\hat{\rho}_{cb} - \hbar\Omega_{ab}e^{-i\omega_{1}t}\hat{\rho}_{da} - \hbar\Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{dc}] \\ \dot{\hat{\rho}}_{dc} &= (i\Delta_{dc} - \gamma_{dc})\hat{\rho}_{dc} - \frac{i}{\hbar} [\hbar\Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}(\hat{\rho}_{cc} - \hat{\rho}_{dd}) + \hbar\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\hat{\rho}_{ac} - \hbar\Omega_{bc}e^{-i\omega_{2}t}\hat{\rho}_{db}]. \end{aligned}$$

A.3. Estado estacionario

Definimos la dependencia temporal de las coherencias como

$$\hat{\rho}_{ba} = \tilde{\rho}_{ba} e^{i\omega_1 t}, \quad \hat{\rho}_{ca} = \tilde{\rho}_{ca} e^{i(\omega_1 + \omega_2)t}, \quad \hat{\rho}_{cb} = \tilde{\rho}_{cb} e^{i\omega_2 t},$$

$$\hat{\rho}_{da} = \tilde{\rho}_{da} e^{i\omega_3 t}, \quad \hat{\rho}_{db} = \tilde{\rho}_{db} e^{-i(\omega_1 - \omega_3)t}, \quad \hat{\rho}_{dc} = \tilde{\rho}_{dc} e^{-i\omega_4 t}.$$
(A.23)

Sustituyendo las ecuaciones (A.23) en (A.22),

$$\begin{split} \dot{\tilde{\rho}}_{ba}e^{i\omega_{1}t} + i\omega_{1}\tilde{\rho}_{ba}e^{i\omega_{1}t} &= (i(\omega_{b} - \omega_{a}) - \gamma_{ba})\tilde{\rho}_{ba}e^{i\omega_{1}t} - i[\Omega_{ba}e^{i\omega_{1}t}(\rho_{aa} - \rho_{bb}) \\ &- \Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\tilde{\rho}_{bd}e^{i(\omega_{1} - \omega_{3})t} + \Omega_{bc}e^{-i\omega_{2}t}\tilde{\rho}_{ca}e^{i(\omega_{1} + \omega_{2})t}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ca}e^{i(\omega_{1} + \omega_{2})t} + i(\omega_{1} + \omega_{2})\tilde{\rho}_{ca}e^{i(\omega_{1} + \omega_{2})t} &= (i(\omega_{c} - \omega_{a}) - \gamma_{ca})\tilde{\rho}_{ca}e^{i(\omega_{1} + \omega_{2})t} - i[\Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}\rho_{ba}e^{i\omega_{1}t} \\ &- \Omega_{ba}e^{i\omega_{1}t}\tilde{\rho}_{cb}e^{i\omega_{2}t} + \Omega_{cd}e^{i\omega_{4}t}\tilde{\rho}_{da}e^{i\omega_{3}t} - \Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\tilde{\rho}_{cd}e^{i\omega_{4}t}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{cb}e^{i\omega_{2}t} + i\omega_{2}\tilde{\rho}_{cb}e^{i\omega_{2}t} &= (i(\omega_{c} - \omega_{b}) - \gamma_{cb})\tilde{\rho}_{cb}e^{i\omega_{2}t} - i[\Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}(\rho_{bb} - \rho_{cc}) \\ &- \Omega_{ab}e^{-i\omega_{1}t}\tilde{\rho}_{ca}e^{i(\omega_{1} + \omega_{2})t} + \Omega_{cd}e^{i\omega_{4}t}\tilde{\rho}_{db}e^{-i(\omega_{1} - \omega_{3})t}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{da}e^{i\omega_{3}t} + i\omega_{3}\tilde{\rho}_{da}e^{i\omega_{3}t} &= (i(\omega_{d} - \omega_{a}) - \gamma_{da})\tilde{\rho}_{da}e^{i\omega_{3}t} - i[\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}(\rho_{aa} - \rho_{dd}) \\ &+ \Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}\tilde{\rho}_{ca}e^{i(\omega_{1} + \omega_{2})t} - \Omega_{ba}e^{i\omega_{1}t}\tilde{\rho}_{db}e^{-i(\omega_{1} - \omega_{3})t}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{db}e^{-i(\omega_{1} - \omega_{3})t} - i(\omega_{1} - \omega_{3})\tilde{\rho}_{db}e^{-i(\omega_{1} - \omega_{3})t} &= (i(\omega_{d} - \omega_{b}) - \gamma_{db})\tilde{\rho}_{db}e^{-i(\omega_{1} - \omega_{3})t} - i[\Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\rho_{ab}e^{-i\omega_{1}t} \\ &+ \Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}\tilde{\rho}_{cb}e^{i\omega_{2}t} - \Omega_{ab}e^{-i\omega_{1}t}\tilde{\rho}_{da}e^{i\omega_{3}t} - \Omega_{cb}e^{i\omega_{2}t}\tilde{\rho}_{dc}e^{-i\omega_{4}t}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{dc}e^{-i\omega_{4}t} - i\omega_{4}\tilde{\rho}_{dc}e^{-i\omega_{4}t} &= (i(\omega_{d} - \omega_{c}) - \gamma_{cd})\tilde{\rho}_{dc}e^{-i\omega_{4}t} - i[\Omega_{dc}e^{-i\omega_{4}t}(\rho_{cc} - \rho_{dd}) \\ &+ \Omega_{da}e^{i\omega_{3}t}\tilde{\rho}_{ac}e^{-i(\omega_{1} + \omega_{2})t} - \Omega_{bc}e^{-i\omega_{2}t}\tilde{\rho}_{db}e^{-i(\omega_{1} - \omega_{3})t}]. \end{split}$$

Despejando, agrupando términos semejantes y aplicando la conservación de la energía en el FWM

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4, \tag{A.25}$$

obtenemos

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{\rho}}_{ba} &= (i(\omega_b - \omega_a - \omega_1) - \gamma_{ba})\tilde{\rho}_{ba} - i[\Omega_{ba}(\rho_{aa} - \rho_{bb}) - \Omega_{da}\tilde{\rho}_{bd} + \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{ca}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ca} &= (i(\omega_c - \omega_a - (\omega_1 + \omega_2)) - \gamma_{ca})\tilde{\rho}_{ca} - i[\Omega_{cb}\rho_{ba} - \Omega_{ba}\tilde{\rho}_{cb} + \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{da} - \Omega_{da}\tilde{\rho}_{cd}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{cb} &= (i(\omega_c - \omega_b - \omega_2) - \gamma_{cb})\tilde{\rho}_{cb} - i[\Omega_{cb}(\rho_{bb} - \rho_{cc}) - \Omega_{ab}\tilde{\rho}_{ca} + \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{db}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{da} &= (i(\omega_d - \omega_a - \omega_3) - \gamma_{da})\tilde{\rho}_{da} - i[\Omega_{da}(\rho_{aa} - \rho_{dd}) + \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{ca} - \Omega_{ba}\tilde{\rho}_{db}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{db} &= (i(\omega_d - \omega_b + (\omega_1 - \omega_3)) - \gamma_{db})\tilde{\rho}_{db} - i[\Omega_{da}\rho_{ab} + \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{cb} - \Omega_{ab}\tilde{\rho}_{da} - \Omega_{cb}\tilde{\rho}_{dc}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{dc} &= (i(\omega_d - \omega_c + \omega_4) - \gamma_{cd})\tilde{\rho}_{dc} - i[\Omega_{dc}(\rho_{cc} - \rho_{dd}) + \Omega_{da}\tilde{\rho}_{ac} - \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{db}]. \end{aligned}$$

Definiendo los desentonamientos a uno y dos fotones como

$$\Delta_{ba} = \omega_b - \omega_a - \omega_1, \ \Delta_{cb} = \omega_c - \omega_b - \omega_2, \Delta_{da} = \omega_d - \omega_a - \omega_3, \ \Delta_{dc} = \omega_d - \omega_c + \omega_4.$$
(A.27)

$$\Delta_{ca} = \Delta_{cb} + \Delta_{ba} = (\omega_c - \omega_b - \omega_2) + (\omega_b - \omega_a - \omega_1) = \omega_c - \omega_a - \omega_1 - \omega_2,$$

$$\Delta_{db} = \Delta_{ba} - \Delta_{da} = (\omega_b - \omega_a - \omega_1) - (\omega_d - \omega_a - \omega_3) = \omega_b - \omega_d + \omega_3 - \omega_1.$$
(A.28)

Las coherencias en (A.26) quedan

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{\rho}}_{ba} &= (i\Delta_{ba} - \gamma_{ba})\tilde{\rho}_{ba} - i[\Omega_{ba}(\rho_{aa} - \rho_{bb}) - \Omega_{da}\tilde{\rho}_{bd} + \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{ca}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ca} &= (i\Delta_{ca} - \gamma_{ca})\tilde{\rho}_{ca} - i[\Omega_{cb}\tilde{\rho}_{ba} - \Omega_{ba}\tilde{\rho}_{cb} + \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{da} - \Omega_{da}\tilde{\rho}_{cd}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{cb} &= (i\Delta_{cb} - \gamma_{cb})\tilde{\rho}_{cb} - i[\Omega_{cb}(\rho_{bb} - \rho_{cc}) - \Omega_{ab}\tilde{\rho}_{ca} + \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{db}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{da} &= (i\Delta_{da} - \gamma_{da})\tilde{\rho}_{da} - i[\Omega_{da}(\rho_{aa} - \rho_{dd}) + \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{ca} - \Omega_{ba}\tilde{\rho}_{db}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{db} &= (i\Delta_{db} - \gamma_{db})\tilde{\rho}_{db} - i[\Omega_{da}\tilde{\rho}_{ab} + \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{cb} - \Omega_{ab}\tilde{\rho}_{da} - \Omega_{cb}\tilde{\rho}_{dc}], \\ \dot{\tilde{\rho}}_{dc} &= (i\Delta_{dc} - \gamma_{dc})\tilde{\rho}_{dc} - i[\Omega_{dc}(\rho_{cc} - \rho_{dd}) + \Omega_{da}\tilde{\rho}_{ac} - \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{db}]. \end{aligned}$$

Por otro lado, para las poblaciones es inmediato que

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{\rho}}_{aa} &= -i(\Omega_{ab}\tilde{\rho}_{ba} - \Omega_{ba}\tilde{\rho}_{ab} + \Omega_{ad}\tilde{\rho}_{da} - \Omega_{da}\tilde{\rho}_{ad}) + \Gamma_{ba}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{aa}) + \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{aa}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{bb} &= -i(\Omega_{ba}\tilde{\rho}_{ab} - \Omega_{ab}\tilde{\rho}_{ba} + \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{cb} - \Omega_{cb}\tilde{\rho}_{bc}) + \Gamma_{ab}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}) + \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{bb}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{cc} &= -i(\Omega_{cb}\tilde{\rho}_{bc} - \Omega_{bc}\tilde{\rho}_{cb} + \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{dc} - \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{cd}) + \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{cc}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{cc}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{dd} &= -i(\Omega_{da}\tilde{\rho}_{ad} - \Omega_{ad}\tilde{\rho}_{da} + \Omega_{dc}\tilde{\rho}_{cd} - \Omega_{cd}\tilde{\rho}_{dc}) + \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{dd}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{dd}). \end{aligned}$$
(A.30)

A.4. Partes real e imaginaria

Definimos las partes real e imaginaria de las coherencias y frecuencias de Rabi como

$$\tilde{\rho}_{mn} = \operatorname{Re}\tilde{\rho}_{mn} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{mn},$$

$$\Omega_{mn} = \operatorname{Re}\Omega_{mn} + i\operatorname{Im}\Omega_{mn}.$$
(A.31)

De modo que, cuando m,n=a,b,c,d

$$\tilde{\rho}_{ba} = \operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba}, \ \Omega_{ba} = \operatorname{Re}\Omega_{ba} + i\operatorname{Im}\Omega_{ba},
\tilde{\rho}_{ca} = \operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca}, \ \Omega_{ca} = \operatorname{Re}\Omega_{ca} + i\operatorname{Im}\Omega_{ca},
\tilde{\rho}_{cb} = \operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb}, \ \Omega_{cb} = \operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{cb},
\tilde{\rho}_{da} = \operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}, \ \Omega_{da} = \operatorname{Re}\Omega_{da} + i\operatorname{Im}\Omega_{da},
\tilde{\rho}_{db} = \operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db}, \ \Omega_{db} = \operatorname{Re}\Omega_{db} + i\operatorname{Im}\Omega_{db},
\tilde{\rho}_{dc} = \operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc}, \ \Omega_{dc} = \operatorname{Re}\Omega_{dc} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc}.$$
(A.32)

Sustituyendo las ecuaciones (A.32) en (A.29), obtenemos

$$\begin{split} \operatorname{Re}\dot{\tilde{\rho}}_{ba} &+ i\operatorname{Im}\dot{\tilde{\rho}}_{ba} = (i\Delta_{ba} - \gamma_{ba})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba}) \\ &- i[(\operatorname{Re}\Omega_{ba} + i\operatorname{Im}\Omega_{ba})(\rho_{aa} - \rho_{bb}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{da} + i\operatorname{Im}\Omega_{ba})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{cb} - i\operatorname{Im}\Omega_{cb})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca})], \\ \operatorname{Re}\dot{\tilde{\rho}}_{ca} &+ i\operatorname{Im}\dot{\tilde{\rho}}_{ca} = (i\Delta_{ca} - \gamma_{ca})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca}) \\ &- i[(\operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{cb})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{ba} + i\operatorname{Im}\Omega_{ba})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{dc} - i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{da} + i\operatorname{Im}\Omega_{da})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cc} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cc})], \\ \operatorname{Re}\dot{\tilde{\rho}}_{cb} + i\operatorname{Im}\dot{\tilde{\rho}}_{cb} = (i\Delta_{cb} - \gamma_{cb})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb}) \\ &- i[(\operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{cb})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{dc} - i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &- i[(\operatorname{Re}\Omega_{da} - i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &- i[(\operatorname{Re}\Omega_{da} - i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &- i[(\operatorname{Re}\Omega_{da} + i\operatorname{Im}\Omega_{da})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{a} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &- i[(\operatorname{Re}\Omega_{da} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{a} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &- i[(\operatorname{Re}\Omega_{da} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{ba} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db})], \\ \operatorname{Re}\dot{\tilde{\rho}}_{db} + i\operatorname{Im}\dot{\tilde{\rho}}_{db} = (i\Delta_{db} - \gamma_{db})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{ba} - i\operatorname{Im}\Omega_{ba})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{ba} - i\operatorname{Im}\Omega_{ba})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{c} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cc} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db})]. \end{aligned}$$

Expandiendo las ecuaciones (A.33),

$$\begin{split} \operatorname{Re}\dot{\tilde{\rho}}_{ba} + i\operatorname{Im}\dot{\tilde{\rho}}_{ba} &= i\Delta_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} - \Delta_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} - \gamma_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} - i\operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Pbb} \\ &+ i[-(\operatorname{Re}\Omega_{ba}\rho_{aa} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\rho_{bb} + i\operatorname{Im}\Omega_{ba}\rho_{aa} - i\operatorname{Im}\Omega_{ba}\rho_{bb}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{ad}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Re}\Omega_{bd}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db} + i\operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} + \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{cd}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + i\operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca} - i\operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca})], \\ \operatorname{Re}\dot{\tilde{\rho}}_{ca} + i\operatorname{Im}\dot{\tilde{\rho}}_{ca} &= i\Delta_{ca}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} - \Delta_{ca}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca} - \gamma_{ca}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} - i\gamma_{ca}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca} \\ &+ i[-(\operatorname{Re}\Omega_{b}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + i\operatorname{Re}\Omega_{b}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{bb} + i\operatorname{Im}\Omega_{b}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{bb} - \operatorname{Im}\Omega_{b}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{bb}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{b}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + i\operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{b}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} - i\operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} - i\operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \gamma_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - i\gamma_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} - i\operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cc} - i\operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cc} + \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cc}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{bc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \Delta_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \gamma_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - i\gamma_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{c}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{bc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - i\operatorname{Re}\Omega_{bc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca} - \operatorname{Im}\Omega_{bc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cd} + \operatorname{Im}\Omega_{bc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cd}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{c}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} + i\operatorname{Re}\Omega_{bc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca} - \operatorname{Im}\Omega_{bc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cd} - \operatorname{Im}\Omega_{bc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cd}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{b}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ad} - \Delta_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} - \gamma_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} - i\operatorname{Im}\Omega_{bc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{c}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ca} - \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ca} + \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cd} - \operatorname{Im}\Omega_{bc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cd}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{c}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cd} - \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cd} + \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cd} - \operatorname{Im}\Omega_{bc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cd}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{b}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{bd} - \operatorname{Ada}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db} - \gamma_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{db} - \operatorname{Im}\Omega_{bc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db}) \\ &- (\operatorname{Re}\Omega_{d}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{bd} - \operatorname{Ada}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db} - \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{db}$$

Finalmente, agrupando términos reales e imaginarios en (A.34) obtenemos

$$\begin{split} \operatorname{Re}\check{\widetilde{p}}_{ba} + i\operatorname{Im}\check{\widetilde{p}}_{ba} &= -\Delta_{ba}\operatorname{Im}\widetilde{\rho}_{ba} - \gamma_{ba}\operatorname{Re}\check{p}_{ba} + \operatorname{Im}\Omega_{ba}\rho_{aa} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\rho_{bb} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\check{\rho}_{db} - \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\check{\rho}_{db} + \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\check{\rho}_{ca} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ca} \\ &+ i(\Delta_{ba}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ba} - \gamma_{ba}\operatorname{Im}\check{\rho}_{ba} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\rho_{aa} + \operatorname{Re}\Omega_{ba}\rho_{bb} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Re}\check{\rho}_{db} + \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Im}\check{\rho}_{db} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ca} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\check{\rho}_{ca}), \\ \operatorname{Re}\check{\rho}_{ca} + i\operatorname{Im}\check{\rho}_{ca}^{2} = -\Delta_{ca}\operatorname{Im}\check{\rho}_{ca} - \gamma_{ca}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ca} + \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\check{\rho}_{ba} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ba} \\ &- \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\check{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\check{\rho}_{cb} + \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\check{\rho}_{da} \\ &- \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\check{\rho}_{da} + \operatorname{Re}\Omega_{a}\operatorname{Im}\check{\rho}_{cc} - \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\check{\rho}_{dc} \\ &+ i(\Delta_{ca}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ca} - \gamma_{ca}\operatorname{Im}\check{\rho}_{ca} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ba} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\check{\rho}_{ba} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\check{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\check{\rho}_{cc} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{da} \\ &- \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\check{\rho}_{da} + \operatorname{Re}\Omega_{a}\operatorname{Re}\check{\rho}_{dc} + \operatorname{Im}\Omega_{ab}\operatorname{Im}\check{\rho}_{cb}), \\ \operatorname{Re}\check{\rho}_{cb} + i\operatorname{Im}\check{\rho}_{cb}^{2} = -\Delta_{cb}\operatorname{Im}\check{\rho}_{cb} - \gamma_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{cb} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}_{bb} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{cc} \\ &- \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\check{\rho}_{cb} - \gamma_{cb}\operatorname{Im}\check{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{db} - \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\check{\rho}_{db}), \\ \operatorname{Re}\check{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\check{\rho}_{da}^{2} = -\Delta_{da}\operatorname{Im}\check{\rho}_{da} - \gamma_{da}\operatorname{Re}\check{\rho}_{da} + \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Ra}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\check{\rho}_{bb} - \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\check{\rho}_{db}), \\ \operatorname{Re}\check{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\check{\rho}_{da}^{2} = -\Delta_{da}\operatorname{Im}\check{\rho}_{da} - \gamma_{da}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ca} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\check{\rho}_{bb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\check{\rho}_{db} \\ &+ i(\Delta_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ca} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{ca} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\check{\rho}_{bb} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\check{\rho}_{bb} \\ &+ i(\Delta_{da}\operatorname{Re}\check{\rho}_{da} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\check{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\check{\rho}_{bb} - \operatorname{Im}\Omega_{bb}\operatorname{R}\check{\rho}_{bb} \\ \\ &+ i(\Delta_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{dc} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{R}\check{\rho}_{bc} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{R}\check{\rho}_{bb} \\ &+ i(\Delta_{cb}\operatorname{Re}\check{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\check{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{R}\check{\rho}_{bc} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{R}$$

Procediendo de manera análoga para las poblaciones, sustituimos (A.32) en (A.30) tal que

$$\begin{split} \dot{\tilde{\rho}}_{aa} &= -i[(\operatorname{Re}\Omega_{ba} - i\operatorname{Im}\Omega_{ba})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba}) - (\operatorname{Re}\Omega_{ba} + i\operatorname{Im}\Omega_{ba})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{da} - i\operatorname{Im}\Omega_{da})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) - (\operatorname{Re}\Omega_{da} + i\operatorname{Im}\Omega_{da})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da})] \\ &+ \Gamma_{ba}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{aa}) + \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{aa}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{bb} &= -i[(\operatorname{Re}\Omega_{ba} + i\operatorname{Im}\Omega_{ba})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba}) - (\operatorname{Re}\Omega_{ba} - i\operatorname{Im}\Omega_{ba})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{cb} - i\operatorname{Im}\Omega_{cb})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb}) - (\operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{cb})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb})] \\ &+ \Gamma_{ab}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}) + \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{bb}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{cc} &= -i[(\operatorname{Re}\Omega_{cb} + i\operatorname{Im}\Omega_{cb})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb}) - (\operatorname{Re}\Omega_{cb} - i\operatorname{Im}\Omega_{cb})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{dc} - i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc}) - (\operatorname{Re}\Omega_{dc} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc})] \\ &+ \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{cc}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{cc}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{dd} &= -i[(\operatorname{Re}\Omega_{da} + i\operatorname{Im}\Omega_{da})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) - (\operatorname{Re}\Omega_{da} - i\operatorname{Im}\Omega_{da})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{dc} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc}) - (\operatorname{Re}\Omega_{dc} - i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da}) \\ &+ (\operatorname{Re}\Omega_{dc} + i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} - i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc}) - (\operatorname{Re}\Omega_{dc} - i\operatorname{Im}\Omega_{dc})(\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + i\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc})] \\ &+ \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{dd}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{dd}). \end{split}$$

Expandiendo las ecuaciones (A.36) cancelando términos semejantes y destruyendo los corchetes, obtenemos

$$\begin{split} \dot{\tilde{\rho}}_{aa} &= \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} + \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} - \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} + \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} \\ &+ \Gamma_{ba}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{aa}) + \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{aa}), \\ \dot{\tilde{\rho}}_{bb} &= -\operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} + \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} - \operatorname{Re}\Omega_{ba}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{ba} + \operatorname{Im}\Omega_{ba}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{ba} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} \\ &+ \Gamma_{ab}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}) + \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{bb}), \\ \dot{\bar{\rho}}_{cc} &= -\operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} - \operatorname{Re}\Omega_{cb}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{cb} + \operatorname{Im}\Omega_{cb}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{cb} \\ &+ \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} - \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} + \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} - \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} \\ &+ \Gamma_{cb}(\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{cc}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{dd} - \tilde{\rho}_{cc}), \\ \dot{\bar{\rho}}_{dd} &= -\operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} + \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} - \operatorname{Re}\Omega_{da}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{da} + \operatorname{Im}\Omega_{da}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{da} \\ &- \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} + \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} - \operatorname{Re}\Omega_{dc}\operatorname{Im}\tilde{\rho}_{dc} + \operatorname{Im}\Omega_{dc}\operatorname{Re}\tilde{\rho}_{dc} \\ &+ \Gamma_{da}(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{dd}) + \Gamma_{cd}(\tilde{\rho}_{cc} - \tilde{\rho}_{dd}). \end{split}$$

Apéndice B

Propiedades del Rubidio

El rubidio fue descubierto en 1861 por los químicos alemanes Robert Bunsen (1811-1899) y Gustav Kirchhoff (1824-1887) quienes lo nombraron así al observar el color rojo que adquiere al calentarse; éste elemento junto con el Cesio fueron los dos primeros elementos descubiertos de manera espectroscópica [103].

B.1. Rubidio 85

Algunos datos relevantes del ⁸⁵Rb considerados en éste trabajo son [102]:

Cantidad	Símbolo	Valor
Número atómico	Z	37
Total de nucleones	Z + N	85
Abundancia natural relativa	$\eta(^{85}\text{Rb})$	72.17(2)%
Tiempo de vida nuclear	$ au_n$	estable
Masa atómica	m	$1.409993199(70) \times 10^{-25} \text{ Kg}$
Densidad a $25^{\circ}C$	$ ho_m$	$1.53 \mathrm{~g/cm^3}$
Punto de fusión	T_{f}	$39.30^{\circ}\mathrm{C}$
Punto de ebullición	T_e	$688^{\circ}\mathrm{C}$
Capacidad calórica específica	c_p	$0.363 \mathrm{~J/g\cdot K}$
Capacidad calórica molar	C_p	$31.060 \text{ J/mol}\cdot\text{K}$
Presión de vapor a 25° C	P_v	$3.92(20) \times 10^{-7}$ torr
Spin nuclear	Ι	5/2
Límite de ionización	E_I	4.17712633(10) eV

Tabla B.1: Propiedades físicas del ⁸⁵Rb.

Cabe mencionar que existen dos transiciones relevantes en el ⁸⁵Rb, la transición $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}$ denominada comúnmente en la literatura como transición D₁ y la transición $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$ o transición D₂. Algunas de las propiedades ópticas de éstas transiciones son [102]

Cantidad	Símbolo	Valor
Frecuencia	ω_0	$2\pi \cdot 377.107385690(46)$ THz
Energía de transición	$\hbar\omega_0$	$1.559590695(38) \ eV$
Longitud de onda en el vacío	λ_1	794.979014933(96) nm
Longitud de onda en el aire	λ_a	794.767282(24) nm
Número de onda en el vacío	k_1	$12578.9483900(15) \text{ cm}^{-1}$
Tiempo de vida	au	27.679(27) ns
Tasa de decaimiento (FWHM)	Γ_{ba}	$36.129(35) \times 10^6 \text{ s}^{-1}$
Velocidad de retroceso	v_r	5.9113 mm/s
Frecuencia de retroceso	ω_r	$2\pi \cdot 3.7179$ KHz
Desplazamiento Doppler $(v_{atomo} = v_r)$	$\Delta\omega_D$	$2\pi \cdot 7.4358$ KHz
Momento dipolar	$\langle J=1/2 er J'=1/2\rangle$	$2.9931(20) \ ea_0$

Tabla B.2: Propiedades ópticas de la transición D_1 $(5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2})$ del ⁸⁵Rb.

Tabla B.3: Propiedades ópticas de la transición D_2 $(5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2})$ del ⁸⁵Rb.

Cantidad	Símbolo	Valor
Frecuencia	ω_0	$2\pi \cdot 384.230406373(14) \text{ THz}$
Energía de transición	$\hbar\omega_0$	1.589049139(38) eV
Longitud de onda en el vacío	λ_3	780.241368271(27) nm
Longitud de onda en el aire	λ_a	780.033489(23) nm
Número de onda en el vacío	k_3	$12816.54678496(45) \text{ cm}^{-1}$
Tiempo de vida	au	26.2348(77) ns
Tasa de decaimiento (FWHM)	Γ_{da}	$38.117(11) \times 10^6 \text{ s}^{-1}$
Velocidad de retroceso	v_r	6.0230 mm/s
Frecuencia de retroceso	ω_r	$2\pi \cdot 3.8597$ KHz
Desplazamiento Doppler $(v_{atomo} = v_r)$	$\Delta\omega_D$	$2\pi \cdot 7.7194$ KHz
Momento dipolar	$\langle J=1/2 er J'=3/2\rangle$	$4.22753(87) \ ea_0$



Figura B.1: Estructura hiperfina de la transición D_1 del ⁸⁵Rb con sus respectivas frecuencias de desdoblamiento. Los desdoblamientos hiperfinos se muestran a escala para cada uno de los multipletes. Se proveen los factores de Landé aproximados g_f para cada una de las proyecciones de los subniveles magnéticos correspondientes a los desdoblamientos hiperfinos [102].



Figura B.2: Estructura hiperfina de la transición D_2 del ⁸⁵Rb con sus respectivas frecuencias de desdoblamiento. Los desdoblamientos hiperfinos se muestran a escala para cada uno de los multipletes. Se proveen los factores de Landé aproximados g_f para cada una de las proyecciones de los subniveles magnéticos correspondientes a los desdoblamientos hiperfinos [102].

Bibliografía

- M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos. Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media. *Rev. Mod. Phys* 77, 633, 2005.
- [2] S. E. Harris, J. E. Field, and A. Imamoglu. Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.* 64, 1107, 1990.
- [3] S. E. Harris. Electromagnetically induced transparency. *Phys. Today* **50**(7), 36, 1997.
- [4] M. O. Scully. From lasers and masers to phaesonium and phasers. *Phys. Rep.* 219, 191, 1992.
- [5] M. D. Lukin, P. Hemmer, and M. O. Scully. Resonant nonlinear optics in phase-coherent media. Adv. At. Mol. Opt. Phys. 42, 347, 2000.
- [6] A. B. Matsko, O. Kocharovskaya, Y. Rostovtsev, A. S. Zibrov, G. R. Welch, and M. O. Scully. Slow, ultraslow, stored, and frozen light. Adv. At. Mol. Opt. Phys. 46, 191, 2001.
- [7] N. V. Vitanov, M. Fleischhauer, B. W. Shore, and K. Bergmann. Coherent manipulation of atoms and molecules by sequential pulses. Adv. At. Mol. Opt. Phys. 46, 55, 2001.
- [8] M. D. Lukin. Colloquium: Trapping and manipulating photon states in atomic ensembles. *Rev. Mod. Phys* 75, 457, 2003.
- [9] E. Arimondo. Coherent population trapping in laser spectroscopy. Prog. Opt. 35, 259, 1996.
- [10] G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, and G. Orriols. An experimental method for the observation of R. F. transitions and laser beat resonances in oriented Na vapour. *Nuovo Cimento Soc. Ital. Fis.*, B 36, 5, 1976.
- [11] E. Arimondo and G. Orriols. Nonabsorbing atomic coherences by coherent two-photon transitions in a three-level optical pumping. *Nuovo Cimento Lett.* **17**, 333, 1976.
- [12] R. M. Whitley and C. R. Stroud Jr. Double optical resonance. Phys. Rev. A 118, 1498, 1976.

- [13] R. W. Boyd, M. S. Malcuit, D. J. Gauthier, and K. Rzazewski. Competition between amplified spontaneous emission and the four-wave-mixing process. *Phys. Rev. A* 35, 1648, 1987.
- [14] R. E. Slusher, L. W. Hollberg, B. Yurke, J. C. Mertz, and J. F. Valley. Observation of squeezed states generated by four-wave mixing in an optical cavity. *Phys. Rev. Lett* 55, 2409, 1985.
- [15] V. Boyer, A. M. Marino, and P. D. Lett. Generation of spatially broadband twin beams for quantum imaging. *Phys. Rev. Lett* 100, 143601, 2008.
- [16] V. Boyer, A. M. Marino, R. C. Pooser, and P. D. Lett. Entangled images from four-wave mixing. Science 321, 544, 2008.
- [17] M. Eisaman, A. Andre, F. Massou, M. Fleichhauer, A. Zibrov, and M. Lukin. Electromagnetically induced transparency with tunable single-photon pulses. *Nature* 438, 837, 2005.
- [18] D. N. Matsukevich, T. Chaneliére, M. Bhattacharya, S. D. Jenkins S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Entanglement of a photon and a collective atomic excitation. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 040405, 2005.
- [19] R. T. Willis, F. E. Becerra, L. A. Orozco, and S. L. Rolston. Four-wave mixing in the diamond configuration in an atomic vapor. *Phys. Rev. A* 79, 033814, 2009.
- [20] S. Franke-Arnold G. Morigi and G.-L. Oppo. Phase-dependent interaction in a fourlevel atomic configuration. *Phys. Rev. A* 66, 053409, 2002.
- [21] T. Chaneliére, D. N. Matsukevich, S. D. Jenkins, T. A. B. Kennedy, M. S. Chapman, and A. Kuzmich. Quantum telecommunication based on atomic cascade transitions. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 093604, 2006.
- [22] R. T. Willis, F. E. Becerra, L. A. Orozco, and S. L. Rolston. Laser Science XXIV. Optical Society of America, Washington D.C., 2008, p.137.
- [23] F. E. Becerra, R. T. Willis, S. L. Rolston, and L. A. Orozco. Nondegenerate four-wave mixing in rubidium vapor: The diamond configuration. *Phys. Rev. A* 78, 013834, 2008.
- [24] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Phys. Rev. Lett.* 7, 118, 1961.
- [25] T. H. Maiman. Optical maser action in ruby. Br. Commun. Electron., 674, 1960.
- [26] T. T. Magel, G. N. Lewis, and D. Pipkin. J. Am. Chem. Soc. 63, 3005, 1941.
- [27] R. W. Boyd. Nonlinear Optics. Academics, New York, 2003.

- [28] R. L. Byer and S. E. Harris. Power and bandwidth of spontaneous parametric emission. *Phys. Rev.* 168, 1064, 1968.
- [29] S. E. Harris, M. K. Oshman, and R. L. Byer. Observation of tunable optical parametric fluorescence. *Phys. Rev. Lett.* 18, 732, 1967.
- [30] B. J. Dalton and P. L. Knight. in: Laser Physics, Lecture Notes in Physics. Springer, Berlin, 1983.
- [31] H. I. Yoo and J. H. Eberly. Dynamical theory of an atom with two or three levels interacting with quantized cavity fields. *Phys. Rep.* 118, 239, 1985.
- [32] P. M. Radmore and P. L. Knight. Population trapping and dispersion in a three-level system. J. Phys. B 15, 561, 1982.
- [33] J. Oreg, F. T. Hioe, and J. H. Eberly. Adiabatic following in multilevel systems. *Phys. Rev. A* 29, 690, 1984.
- [34] B. W. Shore. Examples of counter-intuitive physics (atomic and molecular excitation). Contemp. Phys. 36, 15, 1995.
- [35] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann, and K. Bergmann. Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated raman scattering with partially overlapping laser: A new concept and experimental results. J. Chem. Phys. 92, 5363, 1990.
- [36] N. Dam, L. Oudejans, and J. Reuss. Relaxation rates of ethylene obtained from their effect on coherent transients. *Chem. Phys.* 140, 217, 1990.
- [37] B. W. Shore. The Theory of Coherent Atomic Excitation. Wiley, New York, 1990.
- [38] J. E. Thomas, P. R. Hemmer, S. Ezekiel, C. C. Leiby, Jr. R. H. Picard, and C. R. Willis. Observation of ramsey fringes using a stimulated, resonance raman transition in a sodium atomic beam. *Phys. Rev. Lett.* 48, 867, 1982.
- [39] S. Knappe, V. Shah, P. D. D. Schwindt, L. Hollberg, and J. Kitching. A microfabricated atomic clock. Appl. Phys. Lett. 85, 1460, 2004.
- [40] M. Merimaa, T. Lindvall, I. Tittonen, and E. Ikonen. All-optical atomic clock based on coherent population trapping in 85Rb. J. Opt. Soc. Am. B 20, 273, 2003.
- [41] S. Knappe, P. Schwindt, V. Shah, L. Hollberg, J. Kitching, L. Liew, and J. Moreland. A chip-scale atomic clock based on 87Rb with improved frequency stability. *Opt. Express* 13, 1249, 2005.
- [42] A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and C. Cohen-Tannoudji. Laser cooling below the one-photon recoil energy by velocity-selective coherent population trapping. *Phys. Rev. Lett.* **61**, 826, 1988.

- [43] R. Wynands and A. Nagel. Precision spectroscopy with coherent dark states. Appl. Phys. B 69, 1, 1999.
- [44] J. P. Marangos. Electromagnetically induced transparency. J. Mod. Opt. 45, 471, 1998.
- [45] A. Imamoglu and S. E. Harris. Lasers without inversion: interference of dressed lifetimebroadened states. Opt. Lett. 14, 1344, 1998.
- [46] B. Lounis and C. Cohen-Tannoudji. Coherent population trapping and fano profiles. J. Phys. II France 2, 579, 1992.
- [47] S. E. Harris and J. J. Macklin. Lasers without inversion: Single-atom transient response. *Phys. Rev. A* 40, 4135(R), 1989.
- [48] J. L. Cohen and P. R. Berman. Amplification without inversion: Understanding probability amplitudes, quantum interference, and Feynman rules in a strongly driven system. *Phys. Rev. A* 40, 3900, 1997.
- [49] U. Fano. Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts. *Phys. Rev.* 124, 1866, 1961.
- [50] S. E. Harris. Electromagnetically induced transparency in an ideal plasma. Phys. Rev. Lett. 77, 5357, 1996.
- [51] P. L. Knight, M. A. Lauder, and B. J. Dalton. Laser induced continuum structure. *Phys. Rep.* 190, 1, 1990.
- [52] D. Ter Haar. Theory and applications of the density matrix. Rep. Prog. Phys. 24, 304, 1961.
- [53] M. Sargent III, M. O. Scully, and W. E. Lamb Jr. Laser Physics. Reading, Massachusetts: Addison-Wesley, 1974.
- [54] L. R. Wilcox and W. E. Lamb Jr. Fine structure of short-lived states of hydrogen by a microwave-optical method. II. *Phys. Rev.* 119, 1915, 1960.
- [55] H. R. Schlossberg and A. Javan. Saturation behavior of a doppler-broadened transition involving levels with closely spaced structure. *Phys. Rev.* 150, 267, 1966.
- [56] T. W. Hansch and P. E. Toschek. Theory of a three-level gas laser amplifier. Z. Phys. 236, 213, 1970.
- [57] M. O. Scully. Enhancement of the index of refraction via quantum coherence. Phys. Rev. Lett. 67, 1855, 1991.
- [58] S. E. Harris. Lasers without inversion: Interference of lifetime-broadened resonances. *Phys. Rev. Lett.* 62, 1033, 1989.

- [59] C. Cohen-Tannoudji, B. Zambon, and E. Arimondo. Quantum-jump approach to dissipative processes: application to amplification without inversion. J. Opt. Soc. Am. B 10, 2107, 1993.
- [60] J. C. Petch, C. H. Keitel, P. L. Knight, and J. P. Marangos. Role of electromagnetically induced transparency in resonant four-wave-mixing schemes. *Phys. Rev. A* 53, 543, 1996.
- [61] Y. Q. Li and M. Xiao. Transient properties of an electromagnetically induced transparency in three-level atoms. Opt. Lett. 20, 1489, 1995.
- [62] S. E. Harris. Electromagnetically induced transparency with matched pulses. Phys. Rev. Lett. 72, 552, 1993.
- [63] S. E. Harris. Normal modes for electromagnetically induced transparency. Phys. Rev. Lett. 72, 52, 1994.
- [64] J. H. Eberly, M. L. Pons, and H. R. Haq. Dressed-field pulses in an absorbing medium. *Phys. Rev. Lett.* 72, 56, 1994.
- [65] S. E. Harris and Z. F. Luo. Preparation energy for electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. A* 52, R928(R), 1995.
- [66] P. L. Knight. Comments At. Mol. Phys. 15, 193, 1984.
- [67] J. A. Armstrong and J. J. Wynne. Autoionizing states of sr studied by the generation of tunable vacuum uv radiation. *Phys. Rev. Lett.* 33, 1183, 1974.
- [68] L. I. Pavlov, S. S. Dimov, D. I. Metchkov, G. M. Mileva, and K. V. Stamenov. Efficient tunable tripler of optical frequency at an autoionizing-like resonance in a continuum. *Phys. Lett. A* 89, 441, 1982.
- [69] A. E. Siegman. *Lasers*. University Science of Books, California, 1986. p. 160.
- [70] W. T. Silfvast. Laser Fundamentals. Cambridge University Press, New York, 2004. p. 107.
- [71] W. R. Hindmarsh and J. M. Farr. in Progress in Quantum Electronics. Pergamon, New York, 1972. p. 141-214.
- [72] P. R. Hemmer, D. P. Katz, J. Donoghue, M. Cronin-Golomb, M. S. Shahriar, and P. Kumar. Efficient low-intensity optical phase conjugation based on coherent population trapping in sodium. *Opt. Lett.* **20**, 982, 1995.
- [73] M. Jain, H. Xia, G. Y. Yin, A. J. Merriam, and S. E. Harris. Efficient nonlinear frequency conversion with maximal atomic coherence. *Phys. Rev. Lett.* 77, 4326, 1996.

- [74] K. Hakuta, M. Suzuki, M. Katsuragawa, and J. Z Li. Self-induced phase matching in parametric anti-stokes stimulated raman scattering. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 209, 1997.
- [75] J. F. Reintjes. Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases. Elsevier Science/Academic, Boston, 1984.
- [76] G. Z. Zhang, K. Hakuta, and B. P. Stoicheff. Nonlinear optical generation using electromagnetically induced transparency in atomic hydrogen. *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3099, 1993.
- [77] S. E. Harris and M. Jain. Optical parametric oscillators pumped by population-trapped atoms. Opt. Lett. 22, 636, 1997.
- [78] A. J. Merriam, S. J. Sharpe, H. Xia, D. Manuszak, G. Y. Yin, and S. E. Harris. Efficient gas-phase generation of coherent vacuum ultraviolet radiation. *Opt. Lett.* 24, 625, 1997.
- [79] A. J. Merriam, S. J. Sharpe, M. Shverdin, D. Manuszak, G. Y. Yin, and S. E. Harris. Efficient nonlinear frequency conversion in an all-resonant double-λ system. *Phys. Rev. Lett.* 84, 5308, 2000.
- [80] S. E. Harris, G. Y. Yin, M. Jain, H. Xia, and A. J. Merriam. Nonlinear optics at maximum coherence. *Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A* 355, R4019, 1997.
- [81] A. V. Sokolov, D. R. Walker, D. D. Yavuz, G. Y. Yin, and S. E. Harris. Raman generation by phased and antiphased molecular states. *Phys. Rev. Lett.* 85, 562, 2000.
- [82] A. S. Zibrov, M. D. Lukin, and M. O. Scully. Nondegenerate parametric self-oscillation via multiwave mixing in coherent atomic media. *Phys. Rev. Lett.* 83, 4049, 1999.
- [83] A. V. Sokolov, D. R. Walker, D. D. Yavuz, G. Y. Yin, and S. E. Harris. Femtosecond light source for phase-controlled multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.* 87, 033402, 2001.
- [84] A. B. Matsko, Y. V. Rostovtsev, M. Fleischhauer, and M. O. Scully. Anomalous stimulated brillouin scattering via ultraslow light. *Phys. Rev. Lett.* 86, 2006, 2001.
- [85] S. J. Buckle, S. M. Barnett, P. L. Knight, and M. A. Lauder and D. T. Pegg. Atomic interferometers: phase-dependence in multilevel atomic transitions. *Opt. Acta* 33, 2473, 1986.
- [86] E. Arimondo. Coherent population trapping in laser spectroscopy. Prog. Opt. 35, 259, 1996.
- [87] E. A. Korsunsky, N. Leinfellner, A. Huss, S. Baluschev, and L. Windholz. Phasedependent electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. A* 59, 2302, 1999.
- [88] M. Fleischhauer, M. D. Lukin, A. B. Matsko, and M. O. Scully. Threshold and linewidth of a mirrorless parametric oscillator. *Phys. Rev. Lett.* 84, 3558, 2000.

- [89] E. A. Korsunsky and D. V. Kosachiov. Phase-dependent nonlinear optics with double-λ atoms. Phys. Rev. A 60, 4996, 1999.
- [90] S. E. Harris. Electromagnetically induced transparency with matched pulses. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 552, 1993.
- [91] M. D. Lukin, A. B. Matsko, M. Fleischhauer, and M. O. Scully. Quantum noise and correlations in resonantly enhanced wave mixing based on atomic coherence. *Phys. Rev. Lett.* 82, 1847, 1999.
- [92] Jong-Chan Lee, Kwang-Kyoon Park, Tian-Ming Zhao, and Yoon-Ho Kim. Einsteinpodolsky-rosen entanglement of narrowband photons from cold atoms. arXiv:quantph/1606.02036v2, 2016.
- [93] G. Vidal and R. F. Werner. A computable measure of entanglement. Phys. Rev. A 65, 032314, 2002.
- [94] N. Quesada, H. Vinck-Posada, and B. A. Rodríguez. Density operator of a system pumped with polaritons: A jaynes-cummings like-approach. J. Phys.: Condens. Matt. 23(2), 025301, 2010.
- [95] G. Cipagauta, D. G. Suarez-Forero, and H. Vinck-Posada. Dinámica de un sistema de microcavidad punto cuántico: más allá del régimen excitónico. *RCF* 44, 1, 2012.
- [96] E. Waks and D. Sridharan. Cavity qed treatment of interactions between a metal nanoparticle and a dipole emitter. *Phys. Rev. A* 82, 043845, 2010.
- [97] C. A. Brasil, F. F. Fanchini, and R. de Jesus Napolitano. A simple derivation of the lindblad equation. arXiv:quant-ph/1110.2122v1, 2011.
- [98] H. J. Carmichael. An Open Systems Approach to Quantum Optics. Springer-Verlag, Berlin, 1993. págs. 7,9.
- [99] E. M. Purcell. *Phys. Rev.* **69**, 674, 1946.
- [100] M. O. Scully and M. S. Zubairy. *Quantum Optics*. Cambridge University Press, United Kingdom, 1997. p. 151.
- [101] F. E. Becerra, R. T. Willis, S. L. Rolston, H. J. Carmichael, and L. A. Orozco. Nondegenerate four-wave mixing in rubidium vapor: Transient regime. *Phys. Rev. A* 82, 043833, 2010.
- [102] D. A. Steck. Rubidium 85 D Line Data. University of Oregon, Oregon, 2013.
- [103] J. E. Sansonetti. Wavelengths, transition probabilities and energy levels for the spectra of rubidium (rb i through rb xxxvii). J. Phys. Chem. Ref. Data 35, 301, 2006.