

ESCUELA POLITÉCNICA NACIONAL

FACULTAD DE CIENCIAS

ESTUDIO DE LOS MECANISMOS DE ABSORCIÓN, DISPERSIÓN
Y PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO
ONDAS EN COLORANTES ORGÁNICOS DENTRO DE MEDIOS
CONDENSADOS EN UN MODELO BASADO EN EL
FORMALISMO DE LA MATRIZ DE DENSIDAD.

TRABAJO PREVIO A LA OBTENCIÓN DEL TÍTULO DE FÍSICO

PROYECTO DE INVESTIGACIÓN

JOSUÉ RICARDO LEÓN TORRES
joshua.1605@hotmail.com

Director: DR. JOSÉ LUIS PAZ ROJAS
jlpaz@usb.ve

Codirector: DR. CÉSAR AUGUSTO COSTA VERA
cesar.costa@epn.edu.ec

QUITO, MARZO 2017

DECLARACIÓN

Yo JOSUÉ RICARDO LEÓN TORRES, declaro bajo juramento que el trabajo aquí escrito es de mi autoría; que no ha sido previamente presentado para ningún grado o calificación profesional; y que he consultado las referencias bibliográficas que se incluyen en este documento.

A través de la presente declaración cedo mis derechos de propiedad intelectual, correspondientes a este trabajo, a la Escuela Politécnica Nacional, según lo establecido por la Ley de Propiedad Intelectual, por su reglamento y por la normatividad institucional vigente.

Josué Ricardo León Torres

CERTIFICACIÓN

Certificamos que el presente trabajo fue desarrollado por JOSUÉ RICARDO LEÓN TORRES, bajo nuestra supervisión.

Dr. José Luis Paz Rojas
Director del Proyecto

Dr. César Augusto Costa Vera
Codirector del Proyecto

AGRADECIMIENTOS

A mis estupendos padres: María y Rafael por todo su apoyo, enseñanzas y sus consejos a lo largo de mi vida, a mis entrañables hermanas: Sabrina y Andrea por la alegría y las risas que hemos compartido, a Eleana por ser única e inigualable, gracias por tu compañía, paciencia y cariño.

A mi tía Martha por confiar en mí y por brindarme su apoyo incondicional en esta gran etapa de mi vida.

Estoy inmensamente agradecido con todos mis extraordinarios profesores quienes me han acompañado a lo largo de la carrera, al profesor Luis Lascano y al profesor Nicolás Vásquez y de forma especial a quienes conforman el grupo de Óptica y Espectroscopía del Departamento de Física: al profesor José Luis Paz, al profesor César Costa Vera y al profesor Juan Cárdenas quienes han depositado su confianza en mí y me han guiado en la realización de este trabajo de investigación.

Además a aquellas personas que vieron en mí la capacidad y el talento para compartir mis conocimientos con otros estudiantes de la facultad de ciencias, agradezco a los profesores: Oswaldo Aldás, Juan Carlos Trujillo, Marco Bayas, Marco Calahorrano, Paulina Romero, y a la Srta. Karina Guerrero por toda su predisposición y ayuda.

Como no agradecer a mis amigos, con quienes hemos compartido inolvidables momentos, a Jonathan por todas las horas dedicadas al fino arte del *Chess*, a José por todos esos *tres secos* en el basket, a Carlos, a Mario y a Maritza por todos los ratos de risa, a Franklin por su factor de Gamow, a Cristian y a Alexander por que juntos fuimos *Clavemat*, a Ricardini por recordarme lo bello de la filosofía, a Andrés por ser manaba, a Miguel por ser nuestro campeón de la facultad en el *Chess*, a Dario por su buena vibra cada vez que nos topamos en Civil y a Diego por que sobrevivimos el prepo.

Y para cerrar con broche de oro a mis amigos de la Academia: Ernesto, Cristian, Willian, Andrés, André y Adrián, por su amistad en todos estos años y en los venideros, ya que a su manera han contribuido con este logro.

DEDICATORIA

El esfuerzo y la dedicación invertido en este trabajo está dedicado a mis seres queridos y en especial a mi querida madre: Mariushka, quien ha sido el más importante pilar en mi formación académica y profesional.

Índice general

Lista de figuras	IX
Lista de tablas	XIII
Resumen	XIV
Abstract	XV
1. Introducción	1
2. Antecedentes Físicos	5
2.1. Óptica no lineal	5
2.2. Operador Densidad	9
2.3. Aproximación de la Envolvente Suave para la propagación de las ondas electromagnéticas en el vacío	11
2.4. Aproximación de la Envolvente suave para la propagación de las ondas electromagnéticas en un medio material	12
3. Desarrollo del Modelo Teórico	16
3.1. Modelo Teórico	16
3.2. Interacción Sistema molecular - Reservorio	17
3.2.1. Interacción Campo - Sistema - Reservorio	19
3.3. Ecuaciones Ópticas Estocásticas de Bloch - EOEB	20
3.3.1. Deducción de las Ecuaciones Ópticas de Bloch - EOB	21
3.3.2. Tiempos de relajación T_1 y T_2	23

3.4.	Componentes de Fourier de las poblaciones y coherencias asociadas a los elementos de la matriz de densidad	25
3.4.1.	Componentes de Fourier asociadas a las coherencias	26
3.4.2.	Componente de Fourier asociada a la diferencia de población.	29
3.4.3.	Solución del sistema de ecuaciones acopladas (3.43 - 3.51)	32
3.4.4.	Población de Equilibrio ρ_D^{dc}	37
3.5.	Redes Dinámicas	39
3.5.1.	Creación y Tipos de redes	39
3.5.2.	Redes de Población	40
3.5.3.	Equivalencia entre: Red de población y Polarización No Lineal	41
3.5.4.	Red de población inducida por los haces de Bombeo y de Prueba	41
4.	Aplicación del modelo al cálculo de propiedades ópticas	44
4.1.	Cálculo de la polarización macroscópica	44
4.2.	Polarización macroscópica	46
4.3.	Cálculo de la relación de recursividad	51
4.4.	Efectos asociados al 2 ^{do} orden del haz de prueba	54
4.4.1.	Análisis del 1 ^{er} orden del haz de prueba	55
4.4.2.	Nuevos términos generados por el efecto del 2 ^{do} orden	57
4.5.	Propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas	59
4.5.1.	Ecuaciones de amplitud acoplada	59
4.5.2.	1 ^{er} Caso: Intensidad constante a lo largo del camino óptico	61
4.5.3.	2 ^{do} Caso: Intensidad quasivariable a lo largo del camino óptico	63
4.5.4.	3 ^{er} Caso: Intensidad variable a lo largo del camino óptico	67
5.	Resultados y discusión	69
5.1.	Propiedades Ópticas - Perfiles 2D	70
5.2.	Propiedades Ópticas - Perfiles 3D	73

5.3. Propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas - 1 ^{er} Caso	75
5.3.1. Perfiles de atenuación - 3D	75
5.4. Propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas - 2 ^{do} Caso	77
5.4.1. Perfiles de atenuación - 3D	77
5.5. Propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas - 3 ^{er} Caso	79
6. Conclusiones	85
A. Cálculo de la Población de Equilibrio e implementación del código en el programa Mathematica para el análisis de ρ_D^{dc}.	88
A.0.1. Cálculo de la Población de Equilibrio ρ_D^{dc}	88
A.0.2. Código implementado en el programa Mathematica para el análisis de ρ_D^{dc}	93
B. Cálculo del término $A(0)$.	95
C. Código Implementado en el programa Mathematica para el análisis de las propiedades ópticas.	97
D. Código Implementado en el programa Mathematica para el análisis de la propagación de la señal de MCO.	102
Bibliografía	110

Índice de figuras

1.1. Diagrama del proceso de MCO. Generación de campos a nuevas frecuencias $\{\omega_1 + \omega_2, 2\omega_1 + \omega_2, 2\omega_1 - \omega_2\}$ a partir de los campos incidentes $\{\omega_1, \omega_2\}$	2
2.1. Potencial anarmónico que induce la respuesta no lineal. Tomado y adaptado de Ref. 1	6
3.1. Diagrama del sistema de dos niveles indicando los parámetros de relajación. Tomado y adaptado de Ref. 1	24
3.2. Variación de la componente de equilibrio respecto al haz: a) de bombeo, b) de prueba y c) respecto a ambos haces. Se muestran los efectos del haz de bombeo E_1 y de prueba E_2 sobre la población del sistema ρ_D^{dc}	38
3.3. Distribución espacial de la intensidad de la luz en la región de interferencia de dos campos con vectores de onda K_A y K_B . Tomado y adaptado de Ref. 23.	39
3.4. Red de difracción caracterizada por: $q = K_A - K_B$. Tomado y adaptado de Ref. 23.	41
3.5. Variación espacial de la componente ρ_D^{dc} . Se muestra la variación espacial de la población en el sistema de dos niveles como resultado de la modulación espacial generada por la interferencia del haz de bombeo y prueba.	43
5.1. Efecto del tiempo de relajación transversal - T_2 (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores del tiempo de relajación transversal T_2	70

5.2. Efecto de las relaciones entre los tiempos de relajación: T_1 y T_2 (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintas relaciones entre los tiempos de relajación transversal T_2 y longitudinal T_1	71
5.3. Efecto del factor de acoplamiento entre el sistema molecular y el reservorio térmico: σ (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores del factor de acoplamiento entre el sistema molecular y el reservorio térmico σ	72
5.4. Efecto de la Concentración Molecular - N (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores de la concentración molecular N.	72
5.5. Efecto de la Saturación - S (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores de saturación S.	73
5.6. Efecto del Tiempo de Relajación Transversal - T_2 (3D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 y del tiempo de relajación transversal T_2	74
5.7. Efecto de la Concentración Molecular - N (3D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 y de la concentración molecular N.	74
5.8. Efecto de la Saturación - S (3D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 y de la saturación S.	74
5.9. Variación de la intensidad respecto a las propiedades ópticas: $\eta(\omega_3)$ y $\alpha(\omega_3)$ - 1 ^{er} Caso. Se muestra la variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico y respecto a las propiedades ópticas de dispersión y absorción, respectivamente.	75
5.10. Variación de la intensidad respecto a los campos de bombeo E_1 y prueba E_2 - 1 ^{er} Caso. Se observa que la intensidad del haz de señal se comporta de manera no lineal frente al haz de bombeo y de forma lineal frente al haz de prueba.	76

5.11. Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la saturación del haz de bombeo - 1 ^{er} Caso. Mientras mayor es el efecto de la saturación del haz de bombeo mayor es la intensidad del haz de señal.	76
5.12. Variación de la intensidad respecto a las propiedades ópticas: $\eta(\omega_3)$ y $\alpha(\omega_3)$ - 2 ^{do} Caso. Al igual que en el primer caso de propagación se observa que mientras mayor es el efecto de la propiedad óptica mayor es la atenuación que sufre la intensidad del haz.	77
5.13. Variación de la intensidad respecto a los campos de bombeo E_1 y prueba E_2 - 2 ^{do} Caso. La intensidad del haz de señal se comporta de manera no lineal frente al haz de bombeo y por el contrario de forma lineal frente al haz de prueba.	78
5.14. Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la saturación - 2 ^{do} Caso. Mientras mayor es el efecto de la saturación del haz de bombeo mayor es la intensidad del haz de señal.	78
5.15. Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico para los tres casos de propagación considerando un valor de saturación fijo ($S=0.05$) y distintos valores de concentración molecular. Las líneas punteadas representan la tolerancia de $\pm 10\%$ bajo la cual se analiza la validez de los dos primeros casos frente al tercero. ($p \rightarrow 1^{er} Caso$, $q \rightarrow 2^{do} Caso$, $r \rightarrow 3^{er} Caso$).	80
5.16. Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico para los tres casos de propagación considerando un valor de saturación fijo ($S=0.1$) y distintos valores de concentración molecular, las líneas punteadas representan la tolerancia de $\pm 10\%$ bajo la cual se analiza la validez de los dos primeros casos frente al tercero. ($p \rightarrow 1^{er} Caso$, $q \rightarrow 2^{do} Caso$, $r \rightarrow 3^{er} Caso$).	81
5.17. Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico para los tres casos de propagación considerando un valor de saturación fijo ($S=0.4$) y distintos valores de concentración molecular, las líneas punteadas representan la tolerancia de $\pm 10\%$ bajo la cual se analiza la validez de los dos primeros casos frente al tercero. ($p \rightarrow 1^{er} Caso$, $q \rightarrow 2^{do} Caso$, $r \rightarrow 3^{er} Caso$).	82

5.18. Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico para los tres casos de propagación considerando distintas relaciones entre los tiempos de relajación (T_1 y T_2), las líneas punteadas representan la tolerancia de $\pm 10\%$ bajo la cual se analiza la validez de los dos primeros casos frente al tercero. ($p \rightarrow 1^{er} Caso$, $q \rightarrow 2^{do} Caso$, $r \rightarrow 3^{er} Caso$) 83

Índice de cuadros

4.1. Nuevos términos generados en las Coherencias - $\rho_{ba}(\omega_n)$ con $n= 1, 2, 3$ y en la diferencia de población en equilibrio - ρ_D^{dc}	57
4.2. Nuevos términos generados en la polarización macroscópica - $P(\omega_n)$ con $n= 1, 2, 3$	58
5.1. Parámetros moleculares del cloruro verde de malaquita	69
5.2. Estudio de la validez de los tres casos de propagación considerando una tolerancia de $\pm 10\%$ en la intensidad y de $\pm 0,6[cm]$ en la coordenada z , analizando distintos valores del parámetro de saturación y la concentración molecular.	84
5.3. Estudio de la validez de los tres casos de propagación considerando una tolerancia de $\pm 10\%$ en la intensidad y de $\pm 0,6[cm]$ en la coordenada z , analizando distintos valores del tiempo de relajación transversal (T_2).	84

Resumen

La presente investigación resume un estudio de las propiedades ópticas no lineales y la propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas en sistemas moleculares considerando efectos de saturación del haz de prueba. El presente trabajo de investigación se justificó por su valor teórico, y utilidad práctica. Metodológicamente el trabajo de investigación se abordó bajo el formalismo de la matriz de densidad aplicado a un sistema molecular (colorante orgánico Malaquita Verde) de dos niveles electrónicos inmerso en un reservorio térmico interactuando con dos campos electromagnéticos, de alta y baja intensidad, conocidos como haz de bombeo y haz de prueba respectivamente. La respuesta del sistema molecular surge a partir de la interacción dipolar eléctrica entre el sistema y los campos electromagnéticos. Se consideró la interacción entre el sistema molecular y el reservorio térmico a través de las colisiones moleculares que originan el desplazamiento aleatorio del nivel superior, transformando a la frecuencia natural del sistema en una función estocástica dependiente del tiempo. Se calculó la polarización inducida en el sistema molecular lo que permitió el análisis de las propiedades ópticas no lineales y de la propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas. Para ello fue necesario el cálculo de las Ecuaciones Ópticas Estocásticas de Bloch (EOEB). La determinación de los valores promedios de los distintos elementos de la matriz de densidad en el conjunto estadístico, y el cálculo de la polarización macroscópica inducida por los campos. En base a esto se analizó los distintos procesos fotónicos que se originan por el acoplamiento de los haces. Posteriormente se estudió los perfiles de dispersión y absorción asociados a las propiedades ópticas no lineales del sistema molecular sujetos a los efectos de los parámetros moleculares. Finalmente se estudió la propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas a través de perfiles de intensidad.

Palabras Clave: Propiedades ópticas no lineales, Efectos de saturación, Mezcla de cuatro ondas.

Abstract

The aim of the present work is to summarize the study of the nonlinear optical properties and the propagation of the four wave mixing signal in the molecular system, considering the saturation effects of the probe beam. The present work validates itself by its theoretical value and by its practical utility. The methodology used in the process of the investigation is addressed under the formalism of the density matrix which has been applied for a molecular system of two electrical levels (organic dye: green malachite) immersed in a thermal reservoir in interaction with two electromagnetic fields: one of high intensity (pump beam) and the other one of low intensity (probe beam). The response of the molecular system emerges from the electric dipole interaction between the system and the electromagnetic fields. The interaction between the molecular system and the thermal reservoir through the molecular collisions produces the random offset of the superior level, transforming the natural frequency of the system into the time-dependent stochastic function. The polarization induced by the molecular system was calculated, thus the analysis of the nonlinear optical properties and the propagation of the four wave mixing signal were enabled. For this matter, the application of the Optical Stochastic Bloch Equations, the measurement of the average values of different elements of the density matrix and the calculation of the macroscopic polarization induced by the fields were needed. On this basis, the different photonic processes originated from the beam coupling were analyzed. Subsequently, dispersion and absorption profiles associated with the nonlinear optical properties of the molecular system subject to the effects of the molecular parameters were investigated. Eventually, the propagation of the Four Wave Mixing signal by means of the intensity profiles was investigated.

Keywords: Nonlinear optical properties, Saturation effects, Four-wave mixing.

Capítulo 1

Introducción

La óptica no lineal (ONL) estudia los fenómenos que ocurren como consecuencia de la modificación de las propiedades ópticas de un sistema por la presencia de luz muy intensa [1, 2]. La ONL está fuertemente ligada a la invención del láser, ya que a partir de campos electromagnéticos intensos los fenómenos no lineales son observados [1, 2]. La generación del segundo armónico llevado a cabo por Franken y sus colaboradores en 1961 marcó el inicio de la óptica no lineal [3].

El campo eléctrico necesario para mantener ligado al electrón en el átomo de Hidrógeno, posee un valor de: $5,13 \times 10^9 [V/cm]$. Por otra parte, para mantener ligados a los electrones más externos en materiales comúnmente usados en óptica no lineal se ha calculado experimentalmente un campo eléctrico de $10^8 [V/cm]$ [2, 4]. Los campos electromagnéticos requeridos para generar procesos ópticos no lineales se encuentran en este último orden de magnitud, los cuales son fácilmente alcanzados en los láseres [1, 2, 4].

Una forma de caracterizar a un sistema molecular es a través de sus propiedades ópticas y espectroscópicas, las cuales se elucidan durante el proceso de interacción de la estructura molecular con la radiación electromagnética [1, 2]. Los cambios asociados a las respuestas ópticas de absorción y dispersión, surgen como consecuencia de los distintos procesos multifotónicos inducidos por el campo electromagnético de alta intensidad [1, 2, 4]. La ecuación (1.1) expresa la relación entre el campo electromagnético incidente y la respuesta óptica generada por el sistema molecular en términos de la polarización macroscópica inducida:

$$P(t) = \epsilon_0 \left[\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \chi^{(3)} E^3(t) + \dots \right] \quad (1.1)$$

El primer término del lado derecho de la ecuación anterior, corresponde a la res-

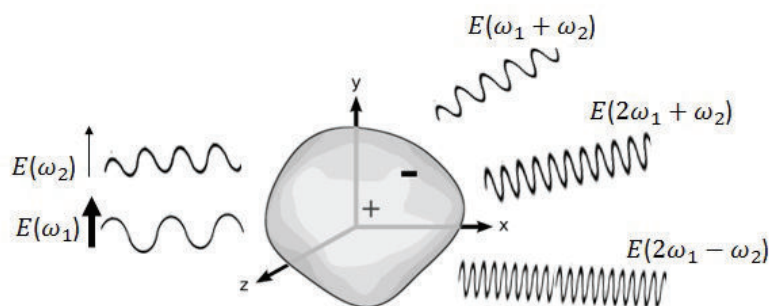


Figura 1.1: Diagrama del proceso de MCO. Generación de campos a nuevas frecuencias $\{\omega_1 + \omega_2, 2\omega_1 + \omega_2, 2\omega_1 - \omega_2\}$ a partir de los campos incidentes $\{\omega_1, \omega_2\}$.

puesta lineal del sistema. Los términos restantes corresponden a respuestas de tipo no lineal. Bajo ciertas condiciones se pueden generar campos que oscilan a nuevas frecuencias debido a la aceleración que sufren los electrones asociados a los momentos dipolares inducidos [1, 2, 4-6].

El presente trabajo se enmarca en la espectroscopía de mezcla de cuatro ondas (MCO). La MCO considera la propagación de campos electromagnéticos a distintas frecuencias $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n$, la dependencia con la intensidad del índice de refracción induce no sólo desplazamientos de fase dentro de cada canal sino que participa en la generación de campos a nuevas frecuencias $\omega_i + \omega_j + \omega_k$. Estos últimos campos que surgen de la interacción de los campos incidentes son estudiados en este trabajo. En la figura 1.1 se presenta un diagrama del proceso de MCO, en ésta se aprecian los campos incidentes de alta y baja intensidad, la interacción de éstos generan nuevos campos a distintas frecuencias.

Este trabajo se centra en estudiar de forma teórica la respuesta espectroscópica y las propiedades ópticas no lineales de un sistema molecular inmerso en un reservorio térmico considerando efectos de saturación del haz de prueba. Para el estudio se ha seleccionado la técnica de espectroscopía no lineal de mezcla de cuatro ondas, donde la solución química estudiada es irradiada por dos campos electromagnéticos, uno de alta intensidad denominado bombeo, y otro de baja intensidad el cual actúa como haz de prueba [1, 2, 5-7]. Los haces se caracterizan por medio de su frecuencia ω_i ($i = 1, 2$) y vector de propagación k_i ($i = 1, 2$), donde los subíndices 1 y 2 corresponden al haz de bombeo y prueba, respectivamente. Dentro del material tiene lugar un proceso de interacción entre el haz fuerte de bombeo con una red de difracción de origen poblacional [8-11], que permite generar a lo largo de la longitud óptica el haz de señal caracterizado por su frecuencia ω_3 y vector de onda k_3 [8].

La molécula de estudio (cloruro verde de malaquita), se presenta a través de un

sistema de dos niveles, sin detalles de su estructura interna vibro-rotacional. El reservorio térmico es caracterizado por una constante de permitividad cuya frecuencia de resonancia natural es distante a la frecuencia de los haces incidentes, es decir el solvente es transparente a la presencia de ambos campos. El tratamiento utilizado incorpora corrimientos en la frecuencia natural del sistema de dos niveles producto de las colisiones entre las moléculas del sistema y el solvente [5].

La evolución del sistema molecular es estudiada a través de la ecuación de Liouville para la matriz densidad [1, 2, 5-7]. Los aspectos no radiativos contemplados en ella, son analizados en términos de los tiempos de relajación longitudinal y transversal [5, 7]. Haciendo uso de la teoría cuántica de relajación se derivan las correspondientes ecuaciones maestras generalizadas para los elementos de la matriz de densidad diagonales y no-diagonales en el sistema de dos niveles, sujetos a aproximaciones Markovianas, ergódicas y seculares [5, 7]. Aproximamos estas ecuaciones fenomenológicamente dando paso a las denominadas Ecuaciones Ópticas Estocásticas de Bloch (EOEB), las cuales describen formalmente la dinámica poblacional así como la evolución temporal de las coherencias inducidas de carácter macroscópico [12-14]. Resolviendo en el espacio de Fourier, se determinan las polarizaciones macroscópicas que actúan como fuente de campos electromagnéticos a nuevas frecuencias cuando son incorporadas en las ecuaciones de Maxwell en el estudio de la propagación [1, 2, 5, 6]. De tal estudio, se obtienen las propiedades ópticas de dispersión y absorción analizadas en función de parámetros de la estructura de la molécula y de parámetros derivados tanto de la interacción con el solvente, y de la interacción con el campo electromagnético. Finalmente, se analizan las propiedades espectroscópicas de la intensidad de la señal generada como función de la intensidad del haz de bombeo. El principal objetivo de nuestra investigación es elucidar nuevos procesos fotónicos que tienen lugar en la interacción radiación-materia y su efecto en la evolución del sistema y en las propiedades ópticas no lineales.

Las propiedades ópticas de diversos materiales han sido ampliamente estudiadas debido a las aplicaciones prácticas en campos de la ciencia y tecnología de la información [15-20]. Los materiales que poseen altas susceptibilidades no lineales son de especial interés debido a que muestran intensas propiedades ópticas no lineales, rápido tiempo de respuesta, amplia banda de respuesta espectral, síntesis sencilla, bajo costo, además de estabilidad térmica y química [15, 16, 21, 22]. Con particular atención los colorantes orgánicos han sido ampliamente estudiados gracias a su alta respuesta no lineal conduciendo a aplicaciones en el área de la optoelectrónica, y fotónica [23-26]. En el área de comunicaciones ópticas han permitido mejorar el pro-

cesamiento, transmisión y recepción de información a través de las fibras ópticas, polarizadores, y moduladores ópticos [27-31].

Otras aplicaciones de relevancia y relacionadas al presente estudio se encuentran en las investigaciones llevadas a cabo por Al-Saidi y colaboradores [21]. A través del colorante orgánico Giemsa revelaron la fuerte dependencia con la concentración molecular que poseen las propiedades ópticas no lineales. Los grupos de investigación conducidos por Khyzhun [32] y Thirupugalmani [33] han realizado la síntesis y caracterización de cristales no centrosimétricos que presentan altas respuestas ópticas no lineales con futuras aplicaciones en el campo de las comunicaciones ópticas [32, 33].

El trabajo está estructurado en 6 capítulos. En el capítulo 2 se presenta el marco teórico en el cuál se sitúa nuestra investigación. En el capítulo 3 se desarrollan las herramientas necesarias para el trabajo, explicando los distintos tipos de interacción entre el campo, el sistema molecular y el solvente a través de conceptos planteados en la teoría Cuántica de Relajación, se presenta la deducción de las EOEB. Adicional se encontrará el cálculo de las componentes de Fourier asociadas a la coherencia y a las poblaciones que oscilan a la frecuencia de interés, se pondrá especial atención a la componente de Fourier asociada a la diferencia de población y a los procesos originados por el acoplamiento de los haces de bombeo y prueba. Al final del capítulo se encontrará una sección destinada al estudio de las redes dinámicas de población originadas por el acoplamiento de los haces fuerte y débil. El cálculo de la polarización macroscópica se llevará a cabo en el capítulo 4 en el que se identificarán términos de susceptibilidades asociados a distintos procesos de coherencia, incoherencia y acoplamiento. Además se presentan los efectos inducidos por el haz de prueba al ser considerado hasta segundo orden en el tratamiento perturbativo, y se identifican nuevos procesos multifotónicos, finalmente se desarrolla el problema de propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas a lo largo del camino óptico en tres diferentes casos de estudio de la propagación del haz. El capítulo 5 expone la discusión de resultados de las propiedades ópticas y de la propagación de la señal a través de la interpretación física de los perfiles de absorción y dispersión y de los perfiles de intensidad. Finalmente las conclusiones del presente trabajo de investigación son presentadas en el capítulo 6.

Capítulo 2

Antecedentes Físicos

En el presente capítulo se presentan los conceptos, y aproximaciones fundamentales de la ONL que serán utilizadas a lo largo de todo el trabajo de investigación. Los temas tratados en este apartado serán los fundamentos de la ONL, y las bases teóricas que sustentan el desarrollo de nuestro cálculo.

2.1. Óptica no lineal

La óptica no lineal estudia los fenómenos asociados al cambio de las propiedades ópticas de un sistema como consecuencia de su interacción con luz intensa [1, 2]. El nacimiento de la ONL está relacionado a la invención del láser, ya que en principio solo luz suficientemente intensa como la de un láser permite un cambio en las propiedades ópticas. La ecuación (1.1) del capítulo anterior, que describe a la polarización macroscópica como una serie de potencias de la amplitud del campo incidente. Donde ϵ_0 es la permitividad del vacío, $\chi^{(1)}$ es la susceptibilidad lineal y $\chi^{(2)}$ y $\chi^{(3)}$ son conocidas como las susceptibilidad ópticas no lineales de segundo y tercer orden respectivamente [1, 2, 5, 6, 18]. La polarización macroscópica juega un rol muy importante en los fenómenos ópticos no lineales ya que puede actuar como fuente de nuevas componentes del campo electromagnético en procesos de generación de segundo y tercer armónico, suma y diferencia de frecuencias, dependencia del índice de refracción en la intensidad del campo, absorción saturable y dispersión estimulada Raman [1, 2, 18].

Desarrollo teórico - Respuesta óptica no lineal

En la literatura podemos encontrar distintos modelos en los cuales se calcula las propiedades ópticas de un sistema molecular. Cada uno de éstos contribuye a dar

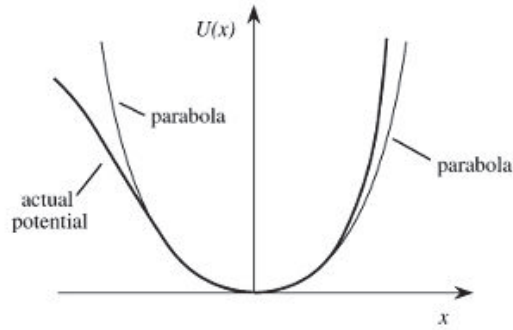


Figura 2.1: Potencial anarmónico que induce la respuesta no lineal. Tomado y adaptado de Ref. 1

una descripción más detallada de dichas propiedades, al considerar ciertos parámetros que en otros modelos no son tomados en cuenta, como los tiempos de relajación asociados a las poblaciones y coherencias e información sobre la estructura atómica o molecular. A continuación se presentan de forma breve los modelos más conocidos.

- **Sólido de Lorentz - Modelo del electrón ligado**

Se propone un modelo en el cuál los electrones están sometidos a un potencial anarmónico dado por la siguiente expresión: [1, 2, 5, 34]

$$U(x) = \frac{1}{2}mx^2 + amx^3. \quad (2.1)$$

El primer término de la parte de derecha de esta ecuación está asociado al comportamiento lineal de los electrones al verse sometidos al potencial armónico, y el segundo término está asociado al comportamiento no lineal generado por el potencial anarmónico. La figura 2.1 muestra la desviación de un potencial frente a otro. El movimiento de los electrones es descrito por la siguiente ecuación diferencial:

$$\frac{d^2x}{dt^2} - 2\frac{\gamma}{m} \frac{dx}{dt} + (x + 3x^2) = -\lambda \frac{e}{m} E(t). \quad (2.2)$$

Donde x es el desplazamiento de los electrones, y $\frac{e}{m}E(t)$ es la fuerza externa producida por el campo electromagnético, que es considerada como una pequeña perturbación, λ es el parámetro que caracteriza la fuerza de dicha perturbación. Este modelo considera al sistema y al campo de forma clásica. La solución del desplazamiento se la expresa en series de potencia de λ , se genera un sistema de ecuaciones diferenciales recursivas que conducen al cálculo

de la polarización $P = Nex$, donde N es el número de osciladores en el sólido, ex el momento dipolar inducido por la presencia del campo y a través de éste se halla la susceptibilidad eléctrica dando razón de las propiedades ópticas del sistema [1, 2, 5, 34].

■ **Modelo de Schrödinger**

Se considera una descripción cuántica del átomo y una descripción clásica del campo. Este modelo revela que la susceptibilidad depende de los parámetros moleculares, de las transiciones dipolares y de la estructura de los niveles atómicos [34].

Para el caso en que el átomo no está sometido al campo electromagnético, las soluciones de la ecuación de Schrödinger

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \hat{H}\psi \quad (2.3)$$

son los estados propios de la energía, conocidos también como estados estacionarios debido a que la evolución temporal de estos estados es dada por un factor de fase exponencial.

$$\psi_n(\mathbf{r}, t) = u_n(\mathbf{r})e^{-i\omega_n t} \quad (2.4)$$

esta solución satisface la ecuación de valores propios $\hat{H}_0 u_n(\mathbf{r}) = E_n u_n(\mathbf{r})$, donde $E_n = \hbar\omega_n$, \hat{H}_0 es el hamiltoniano no perturbado, $u_n(\mathbf{r})$ y E_n son los estados y valores propios de energía, respectivamente [1, 34].

Al considerar al sistema bajo la perturbación del campo electromagnético es habitual resolver la ecuación de Schrödinger a través del uso de la teoría de perturbaciones [1, 2, 34].

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \lambda \hat{V}. \quad (2.5)$$

Donde λ es el parámetro que caracteriza la fuerza de la interacción. Se busca una solución a la ecuación de Schrödinger en la forma de una serie de potencias en λ .

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \psi^{(0)}(\mathbf{r}, t) + \lambda \psi^{(1)}(\mathbf{r}, t) + \lambda^2 \psi^{(2)}(\mathbf{r}, t) + \dots \quad (2.6)$$

Reemplazando esta última expresión en la ecuación (2.3) se obtiene el conjunto de ecuaciones diferenciales recursivas.

$$i\hbar \frac{\partial \psi^{(0)}}{\partial t} = \hat{H}_0 \psi^{(0)} \quad (2.7)$$

$$i\hbar \frac{\partial \psi^{(N)}}{\partial t} = \hat{H}_0 \psi^{(N)} + \hat{V} \psi^{(N-1)}, \quad N = 1, 2, 3, \dots \quad (2.8)$$

La ecuación (2.7) representa la Ec. de Schrödinger para el átomo en ausencia del campo. Se asume que el estado inicial del átomo coincide con su estado fundamental, y su solución puede ser representada como:

$$\psi^{(0)}(\mathbf{r}, t) = u_g(\mathbf{r}) e^{-iE_g t/\hbar} \quad (2.9)$$

Las ecuaciones restantes representadas por la Ec. (2.8), son resueltas haciendo uso del hecho que las funciones propias de energía para el átomo no perturbado constituyen un conjunto completo de funciones base, y toda función de estado puede ser expandida en términos de éstas. Se presenta a la contribución de orden N-ésimo a la función de onda $\psi^{(N)}(\mathbf{r}, t)$ a través de

$$\psi^{(N)}(\mathbf{r}, t) = \sum_l a_l^{(N)}(t) u_l(\mathbf{r}) e^{-i\omega_l t}. \quad (2.10)$$

Aquí $a_l^{(N)}(t)$ indica la amplitud de probabilidad que estando en el N-ésimo orden de perturbación, el átomo se encuentre en el estado l al tiempo t [1, 34]. Reemplazando la Ec. (2.10) en la Ec. (2.8) se obtiene la expresión para $a_l^{(N)}(t)$.

$$a_m^{(N)}(t) = (i\hbar)^{-1} \sum_l \int_{-\infty}^t dt' V_{ml}(t') a_l^{(N-1)}(t') e^{-i\omega_m t}. \quad (2.11)$$

Donde $\omega_{ml} = \omega_m - \omega_l$ y $V_{ml} = \langle u_m | \hat{V} | u_l \rangle$. Una vez hallados los coeficientes $a_l^{(N)}(t)$ las funciones $\psi^{(N)}(\mathbf{r}, t)$ quedan completamente determinadas.

Estas soluciones permiten el cálculo de la polarización macroscópica a través de

$$\langle P \rangle = N \langle \psi | \mu | \psi \rangle \quad (2.12)$$

■ Modelo del operador densidad

Este modelo permite una descripción más precisa del sistema estudiado, incorporando fenómenos de colisión, mismos que están asociados a los mecanismos de relajación que conducen al sistema al equilibrio (tiempos de relajación longitudinal y transversal asociados al sistema) [1, 2, 5]. Se considera un sistema molecular de dos niveles cuya dinámica se estudia a través de la ecuación de Liouville y se considera una descripción clásica del campo [5-7, 35]. La ecuación

ción de Liouville viene dada por

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}, \rho]. \quad (2.13)$$

donde ρ es el operador densidad, el cual posee toda la información física del sistema, y \hat{H} es el hamiltoniano del sistema. Bajo la consideración de un sistema de dos niveles la representación matricial del operador densidad poseerá cuatro elementos, relacionados a las poblaciones (términos diagonales) y a las coherencias (términos no diagonales) [1, 7].

El cálculo de los elementos de matriz del operador densidad se lo puede realizar de dos maneras, en el dominio del tiempo y en el de frecuencias, en el primero se busca una solución en el marco de la teoría de perturbaciones dependientes del tiempo y en la segunda se hallan las componentes de Fourier de cada uno de los elementos de matriz [5, 7, 12-14, 34]. A través de los elementos de matriz se realiza el cálculo de la polarización que ha sido inducida en el sistema por la presencia del campo, para ello se hace uso de la siguiente propiedad del operador densidad

$$\langle A \rangle = Tr(\rho A). \quad (2.14)$$

Esta propiedad indica que el valor esperado de cualquier operador A está dado por la traza del producto de ρ y A , de esta manera se obtendrá la expresión para la polarización

$$P = N\langle \mu \rangle = NTr(\rho \mu). \quad (2.15)$$

donde μ representa el operador dipolar eléctrico.

2.2. Operador Densidad

En esta sección se presenta la motivación del desarrollo del operador densidad y varias de sus características principales.

El operador densidad enlaza las características cuánticas y estadísticas que presenta un sistema molecular. Su desarrollo surge principalmente por dos razones [5, 7, 35, 36]:

1. Por la necesidad del uso de los métodos estadísticos para describir la perturbación aleatoria que sufren los estados moleculares o atómicos al momento de realizar una medición.

2.2. OPERADOR DENSIDAD

2. Por la descripción estadística que debe ser aplicada para analizar sistemas cuyos estados no sean puros sino que presenten estados mezcla.

El operador densidad ρ contiene toda la información física del sistema y viene dado por:

$$\rho = \sum_n W_n |\Psi_n\rangle \langle \Psi_n|, \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (2.16)$$

donde $|\Psi_n\rangle$ son estados que el sistema puede ocupar, W_n es el peso estadístico de cada uno de éstos estados [5, 7, 36]. Para un caso particular de estado puro se tiene:

$$\rho = |\Psi\rangle \langle \Psi|. \quad (2.17)$$

Si deseamos expresar al operador densidad, Ec.(2.16), en forma matricial es conveniente escoger un conjunto de vectores base que sean ortonormales: $\{|\phi_n\rangle\}$ con $n = \{1, 2, 3, \dots\}$.

$$|\Psi_n\rangle = \sum_{m'} a_{m'}^{(n)} |\phi_{m'}\rangle, \quad y$$

$$\langle \Psi_n| = \sum_m a_m^{(n)*} \langle \phi_m|,$$

con lo que

$$\rho = \sum_{nm'm} W_n a_m^{(n)*} a_{m'}^{(n)} |\phi_{m'}\rangle \langle \phi_m|.$$

Los elementos de matriz para el operador densidad en la representación $|\phi_n\rangle$ son

$$\rho_{m'm} = \sum_n W_n a_{m'}^{(n)*} a_m^{(n)}. \quad (2.18)$$

ρ es un operador hermítico (autoadjunto), ya que satisface:

$$\langle n|\rho|m\rangle = \langle m|\rho|n\rangle^*.$$

La probabilidad de encontrar al sistema en el estado $|\Psi_n\rangle$ es W_n y la probabilidad de encontrar a $|\Psi_n\rangle$ en el estado $|\phi_m\rangle$ es $|a_m^{(n)}|^2$, por lo tanto la probabilidad de encontrar al sistema en el estado $|\phi_m\rangle$ está dada por el elemento de matriz diagonal [5, 7, 35, 36]:

$$\rho_{mm} = \sum_n W_n |a_m^{(n)}|^2. \quad (2.19)$$

Los elementos de matriz fuera de la diagonal describen la mezcla entre los diferentes estados.

La traza de ρ es constante e independiente de la representación y satisface las si-

guiente propiedades

$$\begin{aligned} \text{Tr}\rho &= 1, \\ \text{Tr}\rho^2 &= 1 \text{ Estado puro}, \\ \text{Tr}\rho^2 &< 1 \text{ Estado mezcla}. \end{aligned}$$

2.3. Aproximación de la Envolvente Suave para la propagación de las ondas electromagnéticas en el vacío

En esta sección se estudia la propagación del campo electromagnético a través de las ecuaciones de Maxwell en el vacío y en medio materiales [37, 38], se hace uso de las aproximaciones de envolvente suave y de estado estacionario.

El campo eléctrico de una onda electromagnética que se propaga en el vacío está dada por la solución de la siguiente Ec. de onda:

$$\nabla^2 \mathbf{E} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2}, \quad (2.20)$$

para un campo electromagnético dado por

$$\mathbf{E}(z, t) = \frac{1}{2} E_0(z, t) e^{i[Kz - \omega t - \phi(z, t)]}. \quad (2.21)$$

En el vacío o en un medio material se consideran ciertas aproximaciones que permiten que la amplitud $E_0(z, t)$ y la fase $\phi(z, t)$ del campo permanezcan constantes en el tiempo y en el espacio. Se supone que la amplitud y la fase varían de forma lenta, tal que las siguientes desigualdades sean válidas:

$$\begin{aligned} \left| \frac{\partial E_0}{\partial t} \right| &\ll \omega E_0, & \left| \frac{\partial E_0}{\partial z} \right| &\ll K E_0, \\ \left| \frac{\partial \phi}{\partial t} \right| &\ll \omega, & \left| \frac{\partial \phi}{\partial z} \right| &\ll K. \end{aligned}$$

Este conjunto de ecuaciones describen lo que es conocido como la **Aproximación de la Envolvente Suave** (AES) [5]. Esta aproximación describe ondas electromagnéticas cuyas amplitudes y fases varían muy poco dentro de un periodo óptico y una longitud de onda óptica. Son válidas bajo la aproximación paraxial [1, 5, 37, 38].

La AES permite grandes simplificaciones al despreciar términos del tipo: \ddot{E}_0 , $\ddot{\phi}$,

2.4. APROXIMACIÓN DE LA ENVOLVENTE SUAVE PARA LA PROPAGACIÓN DE LAS ONDAS ELECTROMAGNÉTICAS EN UN MEDIO MATERIAL

E_0'' , ϕ'' y $\dot{E}_0\dot{\phi}$. Transforma la ecuación diferencial de segundo orden a un conjunto de ecuaciones diferenciales de primer orden [5].

$$\frac{\partial E_0}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial E_0}{\partial t} = 0, \text{ Para la amplitud,} \quad (2.22)$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial \phi}{\partial t} = 0, \text{ Para la fase.} \quad (2.23)$$

Estas dos ecuaciones describen la propagación de la amplitud y de la fase del campo electromagnético en el vacío, respectivamente.

2.4. Aproximación de la Envolverte suave para la propagación de las ondas electromagnéticas en un medio material

En un medio material los vectores E y B son sustituidos por D y H , respectivamente [37, 38]. Donde $D = \epsilon_0 E - P$ es el vector desplazamiento eléctrico y el campo magnético está dado por $H = \frac{B}{\mu} - M$, con μ como la permeabilidad magnética del medio y M la magnetización del medio, P es la polarización inducida por el campo [37, 38].

La propagación del campo electromagnético en un medio esta dada por

$$-\nabla^2 E + \mu \frac{\partial J}{\partial t} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = -\mu \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \quad (2.24)$$

en ausencia de cargas libres ¹

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}. \quad (2.25)$$

Al considerar la propagación de ondas electromagnéticas dentro de un medio, el principal factor a tomar en cuenta es la polarización inducida. [1, 5].

Se considera a la polarización a través de la expresión

$$P(z, t) = \frac{1}{2} P(z, t) e^{i[Kz - \omega t - \phi(z, t)]}, \quad (2.26)$$

donde $P(z, t)$ representa la amplitud (compleja) de la polarización y puede ser ex-

¹Se ha despreciado el término $\nabla \cdot E$ debido a que el campo eléctrico varía levemente a lo largo de la dirección en la cual apunta [3].

2.4. APROXIMACIÓN DE LA ENVOLVENTE SUAVE PARA LA PROPAGACIÓN DE LAS ONDAS ELECTROMAGNÉTICAS EN UN MEDIO MATERIAL

presada como $P(z, t) = P' - iP''$.

La AES para la polarización se define para las condiciones siguientes [5]:

$$\left| \frac{\partial P'}{\partial t} \right| \ll \omega |P'|, \quad \left| \frac{\partial P''}{\partial t} \right| \ll \omega |P''|,$$

$$\left| \frac{\partial P}{\partial t} \right| \ll \omega |P|.$$

Se utilizan las ecuaciones (2.21) y (2.26) para analizar la propagación del campo electromagnético en un medio material a través de la Ec. (2.25). Se desarrolla término a término

1^{er} Término:

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \left[\frac{\partial^2 E_0}{\partial z^2} + 2 \frac{\partial E_0}{\partial z} \left(iK - i \frac{\partial \phi}{\partial z} \right) + E_0 \left(iK - i \frac{\partial \phi}{\partial z} \right)^2 - iE_0 \frac{\partial^2 \phi}{\partial z^2} \right] e^{i(Kz - \omega t - \phi)}$$

al considerar la AES se transforma en

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \left[2iK \frac{\partial E_0}{\partial z} - K^2 E_0 + 2KE_0 \frac{\partial \phi}{\partial z} \right] e^{i(Kz - \omega t - \phi)}$$

2^{do} Término:

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2} \left[\frac{\partial^2 E_0}{\partial t^2} - 2i \frac{\partial E_0}{\partial t} \left(\omega + \frac{\partial \phi}{\partial z} \right) - E_0 \left(\omega + \frac{\partial \phi}{\partial z} \right)^2 + iE_0 \frac{\partial^2 \phi}{\partial t^2} \right] e^{i(Kz - \omega t - \phi)}$$

al considerar la AES se transforma en

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \left[-\frac{2i\omega}{c^2} \frac{\partial E_0}{\partial t} - \frac{\omega^2}{c^2} E_0 - \frac{2\omega}{c^2} E_0 \frac{\partial \phi}{\partial z} \right] e^{i(Kz - \omega t - \phi)}$$

3^{er} Término:

$$\mu \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} = \mu \left[-2i\omega \frac{\partial P}{\partial t} - \omega^2 P - 2\omega P \frac{\partial \phi}{\partial z} \right] e^{i(Kz - \omega t - \phi)}$$

al considerar la AES se transforma en

$$\mu \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} = -\mu\omega^2 (P' - iP'') e^{i(Kz - \omega t - \phi)}$$

Se agrupan términos, se simplifica el término $e^{i(Kz - \omega t - \phi)}$ y separar en parte real e imaginaria se tiene

$$\frac{\partial E_0}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial E_0}{\partial t} = -\frac{K}{2\epsilon} \text{Im}(P), \quad (2.27)$$

$$E_0 \left(\frac{\partial \phi}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial \phi}{\partial t} \right) = -\frac{K}{2\epsilon} \text{Re}(P). \quad (2.28)$$

Estas dos ecuaciones describen la propagación de la amplitud y de la fase del campo electromagnético dentro de un medio material [5].

Respuesta lineal:

Si el sistema responde de forma lineal a la interacción con el campo electromagnético, esto es: $P = \epsilon_0 \chi E_0$, donde χ es la susceptibilidad lineal compleja, dada por $\chi = \chi' + i\chi''$, las ecuaciones (2.27) y (2.28) se transforman en:

$$\frac{\partial E_0}{\partial z} = -\frac{K}{2} \text{Im}(\chi) E_0, \quad (2.29)$$

$$E_0 \left(\frac{\partial \phi}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial \phi}{\partial t} \right) = -\frac{K}{2} \text{Re}(\chi) E_0, \quad (2.30)$$

Se ha considerado la aproximación de estado estacionario ($\frac{\partial E_0}{\partial t} = 0$). La variación de la amplitud del campo está asociado a la parte imaginaria de la susceptibilidad lineal, lo cual conduce a la ley de Beer para la intensidad, definiendo: $\alpha = \frac{K}{2}(\chi'' + i\chi')$ como el coeficiente de absorción complejo [37, 38]. La variación de la fase del campo está asociada a la parte real de la susceptibilidad lineal, se puede relacionar con el índice de refracción $\eta^2 = \epsilon$ el cuál da razón de los procesos de dispersión en el material [1, 2, 5].

Respuesta no lineal:

Si ahora la respuesta del sistema al campo electromagnético es no lineal, se supondrá un campo y polarización de la forma

$$\mathbf{E}(z, t) = \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{E}}(z, t) e^{i(Kz - \omega t)}, \quad \tilde{\mathbf{E}}(z, t) = E_0(z, t) e^{-i\phi}, \quad (2.31)$$

$$\mathbf{P}(z, t) = \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{P}}(z, t) e^{i(Kz - \omega t)}. \quad (2.32)$$

Sustituyendo en la ecuación de propagación (2.25) y considerando la AES:

$$\frac{\partial \tilde{\mathbf{E}}}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial \tilde{\mathbf{E}}}{\partial t} = \frac{2\pi i \omega}{\eta c} \tilde{\mathbf{P}}, \quad (2.33)$$

se toma en cuenta la aproximación de estado estacionario y desarrollando a $\tilde{\mathbf{P}}$ como la contribución de una parte lineal (L) y no lineal (NL).

2.4. APROXIMACIÓN DE LA ENVOLVENTE SUAVE PARA LA PROPAGACIÓN DE LAS ONDAS ELECTROMAGNÉTICAS EN UN MEDIO MATERIAL

Al considerar $K = \frac{\omega}{c}\eta$ [1, 2],

$$\begin{aligned}\frac{\partial \tilde{E}}{\partial z} &= \frac{2\pi i \omega}{\eta c} (\tilde{P}^{(L)} + \tilde{P}^{(NL)}) \\ &= \frac{2\pi i \omega}{\eta c} \epsilon_0 \chi^{(L)} \tilde{E} + \frac{2\pi i \omega}{\eta c} \tilde{P}^{(NL)} \\ &= -\alpha \tilde{E} + \frac{2\pi i \omega}{\eta c} \tilde{P}^{(NL)}\end{aligned}$$

donde $\alpha = -\frac{2\pi i \omega}{\eta c} \chi^{(L)}$ es la amplitud compleja de absorción. Se define de forma general la expresión para el análisis de propagación de campos electromagnéticos dentro de un medio:

$$\frac{\partial \tilde{E}_n}{\partial z} = \frac{2\pi i \omega_n}{\eta_n c} \chi_n^{(L)} \tilde{E}_n + \frac{2\pi i \omega_n}{\eta_n c} \tilde{P}_n^{(NL)}. \quad (2.34)$$

Se toma la Ec.(2.29), la cual considera la relación entre la amplitud del campo y la parte imaginaria de la susceptibilidad:

$$\frac{\partial \tilde{E}_n}{\partial z} = -\frac{2\pi \omega_n}{\eta_n c} \text{Im}\{\chi_n^{(L)}\} \tilde{E}_n + \frac{2\pi i \omega_n}{\eta_n c} \tilde{P}_n^{(NL)}. \quad (2.35)$$

Capítulo 3

Desarrollo del Modelo Teórico

En este capítulo se presentan los conceptos fundamentales para describir la dinámica del sistema molecular de dos niveles electrónicos a través de la teoría cuántica de relajación que describe la interacción entre el sistema molecular, el solvente y el campo electromagnético. Se contemplará la validez de la ecuación de Liouville para describir un sistema compuesto por dos subsistemas que interactúan mutuamente. Se realiza la deducción de las EOEB para el sistema de dos niveles estudiado. Se presenta la interpretación física de los elementos de matriz asociados al operador de densidad, y de los tiempos de relajación longitudinal y transversal. Además se estudia el origen de los cambios en las propiedades ópticas que surgen por la formación de redes dinámicas de origen poblacional en la región de interferencia de los haces fuerte y débil.

3.1. Modelo Teórico

Una de las consecuencias directas de las reglas generales de la mecánica cuántica, es el principio de no separabilidad que establece [7, 39]:

"Si dos sistemas han interactuado en el pasado, en general, no es posible asignar un solo vector de estado a ninguno de los dos subsistemas".

Esto se debe a que las amplitudes de probabilidad están correlacionadas y no pueden ser factorizadas debido a que ambos sistemas han interactuado antes, conocido también como entrelazamiento o entanglement (en inglés), en lo posterior se verá que esta correlación se puede romper dependiendo de la naturaleza de las interacciones entre ambos sistemas ya que éstas son caracterizadas por el tiempo de correlación τ que indica el intervalo de tiempo en el cual el sistema puede retener su

memoria [7, 39].

Una vez que un sistema ha interactuado con otro, éste se encuentra en un estado mezcla, por lo tanto es necesario encontrar la matriz de densidad que describa únicamente al sistema de interés [7, 35]. Se procede a calcular la matriz de densidad total que describa a ambos subsistemas y luego ésta es proyectada sobre el subespacio de interés, a ésta última se la conoce como matriz de densidad reducida y contiene toda la información del subsistema sobre el cuál se ha proyectado [1, 2, 7, 35].

3.2. Interacción Sistema molecular - Reservorio

En esta sección se considera la interacción entre el sistema molecular y el solvente el cuál actúa como reservorio o baño térmico. Se considera al sistema molecular como un sistema que interactúa con sus alrededores a través del intercambio de energía [5, 7]. Al proceso de la evolución gradual de un sistema para alcanzar el equilibrio se lo conoce como proceso de relajación [7, 35].

Se toma la ecuación de Liouville Ec.(2.13) para describir la dinámica del sistema molecular al interactuar con el reservorio. El hamiltoniano total H está compuesto por: el hamiltoniano no perturbado H_0 y $V(t)$ que representa la interacción entre el sistema y el reservorio. Se trata al problema a través de la teoría de perturbaciones dependientes del tiempo, por esta razón es indispensable pasar de la representación de Schrödinger a la representación de interacción. De esta manera la dependencia temporal de los vectores de estado se encuentra en el potencial $V(t)$ y se remueven los términos que varían rápidamente asociados a H_0 [5, 7, 35], así la Ec.(2.13) se transforma en:

$$\dot{\rho}(t)_I = -\frac{i}{\hbar}[V(t)_I, \rho(t)_I], \quad (3.1)$$

donde el sufijo I indica que se ha considerado la representación de interacción. Con lo que se obtienen las soluciones de primer y segundo orden de perturbación, respectivamente:

$$\rho(t)_I = \rho(0)_I - \frac{i}{\hbar} \int_0^t [V(\tau)_I, \rho(\tau)_I] d\tau, \quad y \quad (3.2)$$

$$\dot{\rho}(t)_I = -\frac{i}{\hbar} tr_R[V(t)_I, \rho(0)_I] - \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t dt' tr_R[V(t)_I, [V(t')_I, \rho(t')_I]]. \quad (3.3)$$

El acoplamiento entre ambos sistemas puede conducir a un intercambio reversible de energía, para evitar esto e incluso promover que tengan lugar procesos irrever-

3.2. INTERACCIÓN SISTEMA MOLECULAR - RESERVORIO

sibles se debe asegurar que la energía que una vez ha sido cedida por el sistema molecular al reservorio no retorne a él nuevamente dentro de un intervalo de tiempo finito [5, 7, 35], para esto se hace uso de las siguientes suposiciones hechas por Fano [40].

1. Se asume que el reservorio posee un gran número de grados de libertad de tal forma que los efectos de la interacción con el sistema se disipan rápidamente y no responde al sistema de vuelta, por lo que el reservorio se encuentra en equilibrio térmico a temperatura constante independientemente de la cantidad de energía que sea transferida hacia él desde el sistema [40].

Esto conduce a:

$$\rho(t)_R = \rho(0)_R \rightarrow \rho(t)_{SR} = \rho(t)_S \rho(0)_R$$

con:

$$\rho(0)_R = \frac{e^{-\beta H_R}}{\text{Tr}_R\{e^{-\beta H_R}\}}, \quad \beta = \frac{1}{K_B T}, \quad K_B : \text{Constante de Boltzman}$$

donde $\rho(t)_{SR}$ es el operador de densidad asociado al sistema compuesto por el sistema molecular y el reservorio, $\rho(t)_R$ es el operador de densidad asociado al reservorio y $\rho(t)_S$ es el operador de densidad asociado al sistema molecular. Tr_R representa la traza tomada únicamente para los elementos del reservorio, conocida como traza reducida.

2. Se asume que $\dot{\rho}(t)_{SI}$ depende solo de $\rho(t)_I$, es decir de su valor presente, en otras palabras se asume que el sistema pierde toda la memoria de su pasado, lo que se conoce como aproximación Markoviana [40].

Con esto se llega a la expresión de la matriz de densidad para el sistema molecular en la representación de Schrödinger:

$$\langle m' | \dot{\rho}(t)_S | m \rangle = -\frac{i}{\hbar} \langle m' | [H, \rho(t)_S] | m \rangle + \delta_{m'm} \sum_n \langle n | \rho(t)_S | n \rangle W_{mn} - \gamma_{m'm} \langle m' | \rho(t)_S | m \rangle. \quad (3.4)$$

El primer término describe la dinámica del sistema no perturbado, el segundo término está asociado con las transiciones entre los niveles atómicos $|n\rangle \rightarrow |m\rangle$ que son inducidas por la interacción con el reservorio, y el último término está asociado a los procesos de relajación que conducen al sistema al equilibrio [7].

Las ecuaciones que describen la dinámica de las matrices de densidad reducidas se conocen como ecuaciones maestras generalizadas, las cuales fueron introducidas

por primera vez a la física estadística por Pauli en 1928 [7, 35].

Los términos diagonales de la ecuación maestra generalizada son

$$\dot{\rho}(t)_{mm} = \sum_{n \neq m} \rho(t)_{nn} W_{mn} - \rho(t)_{mm} \sum_{n \neq m} W_{nm}, \quad (3.5)$$

esta ecuación es conocida como la ecuación maestra de Pauli, en donde los elementos de la diagonal $\rho(t)_{mm}$ representan la probabilidad de encontrar el nivel atómico $|m\rangle$ ocupado al tiempo t . Esta probabilidad aumenta debido a las transiciones de todos los otros niveles $|n\rangle$ a $|m\rangle$, y disminuye como resultado de las transiciones desde $|m\rangle$ a todos los otros estados $|n\rangle$ [1, 7], por lo que la tasa de cambio de los elementos de matriz diagonales son dados en forma general a través de la siguiente relación:

$$\dot{\rho}(t)_{mm} = \text{Ganancia en } |m\rangle - \text{Pérdida en } |m\rangle \quad (3.6)$$

3.2.1. Interacción Campo - Sistema - Reservorio

En esta sección se toma en cuenta la interacción entre el sistema y el campo electromagnético externo, y los procesos de relajación inducidos por la presencia del reservorio.

Existe una competencia entre dos procesos. Los mecanismos de relajación están asociados a las transiciones del nivel superior al inferior $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$ y la interacción con el campo electromagnético conduce a transiciones del nivel inferior al superior $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$, ocurriendo una transmisión de energía del campo electromagnético al sistema molecular y de éste al reservorio en forma de calor [7].

El operador densidad que describe la evolución del sistema al interactuar con el campo electromagnético es dado por

$$\dot{\rho}(t)_{m'm} = -i\omega_{m'm}\rho(t)_{m'm} - \frac{i}{\hbar} \langle m' | [V(t), \rho(t)_S] | m \rangle, \quad (3.7)$$

donde $\omega_{m'm} = \frac{E_{m'} - E_m}{\hbar}$ y $V(t)$ es el potencial dipolar eléctrico, el segundo término representa la tasa de cambio de la probabilidad de población del nivel $|m\rangle$ inducida por el campo electromagnético.

La interacción entre el sistema y el reservorio térmico está dada por el término de relajación

$$\dot{\rho}(t)_{m'm} = \sum_{nn'} R_{m'mn'n} \rho(t)_{n'n}, \quad (3.8)$$

en donde $R_{m'mn'n}$ representa la tasa de variación de población inducida por los efec-

tos de relajación del reservorio. Si se considera la región óptica se debe añadir un término extra que está asociado con los efectos de decaimiento espontáneo:

$$\dot{\rho}(t)_{m'm} = -\Gamma_{m'm}\rho(t)_{m'm}, \quad (3.9)$$

en donde $\Gamma_{m'm}$ es la tasa de decaimiento espontáneo del nivel excitado, agrupando cada uno de los términos se tiene la ecuación que describe la evolución temporal del sistema considerando su interacción con el campo, el reservorio y los procesos de emisión espontáneos [7]:

$$\dot{\rho}(t)_{m'm} = -i\omega_{m'm}\rho(t)_{m'm} - \frac{i}{\hbar}\langle m'|[V(t), \rho(t)_S]|m\rangle + \sum_{nn'} R_{m'mn'n}\rho(t)_{n'n} - \Gamma_{m'm}\rho(t)_{m'm}. \quad (3.10)$$

3.3. Ecuaciones Ópticas Estocásticas de Bloch - EOEB

En la presente sección se realiza la deducción de las EOEB para el sistema de dos niveles estudiado. Se presenta la interpretación física de los elementos de matriz asociados al operador de densidad, además se explican los tiempos de relajación longitudinal y transversal. Por último se ingresa la variable estocástica que surge por las colisiones de las moléculas del sistema con las del reservorio térmico.

Se considera el siguiente hamiltoniano:

$$H = H_0 + V(t). \quad (3.11)$$

En la cual H_0 representa el hamiltoniano del sistema no perturbado y $V(t)$ representa la interacción entre el sistema molecular y el campo electromagnético, dada por la interacción dipolar eléctrica, $V(t) = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(t)$, que considera que las dimensiones atómicas son mucho más pequeñas que la longitud de onda del campo incidente, es decir $a_0 \ll \lambda$, donde λ es la longitud de onda del campo. Se lleva al sistema fuera del equilibrio termodinámico al inducir transiciones del estado fundamental al estado excitado [5, 7, 35]. La dinámica del sistema es gobernada por dos procesos: transiciones inducidas por el campo electromagnético que generan un aumento en el número de átomos que pueblan el estado excitado, y a su vez este aumento se ve disminuido por los efectos de relajación en los cuales se transfiere energía desde el estado excitado al reservorio térmico para alcanzar las condiciones de equilibrio termodinámico [7, 35].

3.3.1. Deducción de las Ecuaciones Ópticas de Bloch - EOB

En este apartado se utilizan las ecuaciones (2.5) y (2.13) que representan al hamiltoniano del sistema y a la ecuación de Liouville, para deducir las EOB. A través de sencilla manipulación algebraica se llega a la siguiente ecuación que representa la evolución temporal del operador de densidad para el sistema molecular en su forma matricial.

$$\dot{\rho}_{nm} = -i\omega_{nm}\rho_{nm} - \frac{i}{\hbar} \sum_v (V(t)_{nv}\rho_{vm} - \rho_{nv}V(t)_{vm}). \quad (3.12)$$

El primer término de la ecuación está asociado a la frecuencia natural del sistema. El segundo término representa la tasa de variación de poblaciones de un nivel $|m\rangle$, generada por las transiciones que induce el campo electromagnético. En ausencia del potencial de interacción las poblaciones de los estados base y excitado permanecen constantes, $\dot{\rho}_{nm} = 0$ con $n=\{a,b\}$, evitando que el sistema salga del equilibrio termodinámico [1, 2, 7].

Se realiza el cálculo para cada uno de los elementos de matriz del operador densidad a partir de la ecuación (3.12). Se consideran nulos los momentos dipolares permanentes $\{\mu_{aa}, \mu_{bb}\}$ ya que los estados $|a\rangle$ y $|b\rangle$ poseen paridad definida, al igual que el operador r , que es impar.

Se desarrolla el cálculo de cada uno de los componentes matriciales de la evolución temporal del operador densidad para un sistema de dos niveles $\{a, b\}$, usando la ec.(3.12).

Los términos diagonales $\dot{\rho}_{aa}$ y $\dot{\rho}_{bb}$ están asociados a la variación temporal de la población del estado base y excitado, respectivamente. Estas poblaciones varían por la presencia del campo electromagnético y como consecuencia el sistema molecular se aleja del equilibrio termodinámico.

Componente $\dot{\rho}_{aa}$:

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{aa} &= -i\omega_{aa}\rho_{aa} - \frac{i}{\hbar} \sum_{v=a}^b (V(t)_{av}\rho_{va} - \rho_{av}V(t)_{va}) \\ &= -\frac{i}{\hbar} (V(t)_{aa}\rho_{aa} - \rho_{aa}V(t)_{aa} + V(t)_{ab}\rho_{ba} - \rho_{ab}V(t)_{ba}) \\ \dot{\rho}_{aa} &= -\frac{i}{\hbar} (V(t)_{ab}\rho_{ba} - \rho_{ab}V(t)_{ba}). \end{aligned}$$

Componente $\dot{\rho}_{bb}$:

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{bb} &= -i\omega_{bb}\rho_{bb} - \frac{i}{\hbar} \sum_{v=a}^b (V(t)_{bv}\rho_{vb} - \rho_{bv}V(t)_{vb}) \\ &= -\frac{i}{\hbar} (V(t)_{bb}\rho_{bb} - \rho_{bb}V(t)_{bb} + V(t)_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V(t)_{ab}) \\ \dot{\rho}_{bb} &= -\frac{i}{\hbar} (V(t)_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V(t)_{ab})\end{aligned}$$

Los términos no diagonales $\dot{\rho}_{ab}$ y $\dot{\rho}_{ba}$ están asociados a la evolución temporal de la pérdida de coherencia de los momentos dipolares que han sido inducidos por el campo electromagnético en el sistema molecular.

Componente $\dot{\rho}_{ab}$:

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{ab} &= -i\omega_{ab}\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar} \sum_{v=a}^b (V(t)_{av}\rho_{vb} - \rho_{av}V(t)_{vb}) \\ &= -i\omega_{ab}\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar} (V(t)_{aa}\rho_{ab} - \rho_{aa}V(t)_{ab} + V(t)_{ab}\rho_{bb} - \rho_{ab}V(t)_{bb}) \\ &= -i\omega_{ab}\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar} (-\rho_{aa}V(t)_{ab} + V(t)_{ab}\rho_{bb}) \\ \dot{\rho}_{ab} &= i\omega_{ba}\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar} (\rho_{bb} - \rho_{aa})V(t)_{ab}\end{aligned}$$

Componente $\dot{\rho}_{ba}$:

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{ba} &= -i\omega_{ba}\rho_{ba} - \frac{i}{\hbar} \sum_{v=a}^b (V(t)_{bv}\rho_{va} - \rho_{bv}V(t)_{va}) \\ &= -i\omega_{ba}\rho_{ba} - \frac{i}{\hbar} (V(t)_{ba}\rho_{aa} - \rho_{ba}V(t)_{aa} + V(t)_{bb}\rho_{ba} - \rho_{bb}V(t)_{ba}) \\ &= -i\omega_{ba}\rho_{ba} - \frac{i}{\hbar} (V(t)_{ba}\rho_{aa} - \rho_{bb}V(t)_{ba}) \\ \dot{\rho}_{ba} &= -i\omega_{ba}\rho_{ba} + \frac{i}{\hbar} (\rho_{bb} - \rho_{aa})V(t)_{ba}\end{aligned}$$

De aquí se detallan las nombradas EOB¹ [7, 35]:

$$\dot{\rho}_{aa} = -\frac{i}{\hbar} (V(t)_{ab}\rho_{ba} - \rho_{ab}V(t)_{ba}), \quad (3.13)$$

$$\dot{\rho}_{bb} = -\frac{i}{\hbar} (V(t)_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V(t)_{ab}), \quad (3.14)$$

¹Originalmente las ecuaciones de Bloch fueron deducidas para analizar la dinámica de un sistema compuesto por partículas de Spin $\frac{1}{2}$ a través de la magnetización inducida por un campo electromagnético [1, 7].

$$\dot{\rho}_{ab} = i\omega_{ba}\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar}(\rho_{bb} - \rho_{aa})V(t)_{ab}, \quad (3.15)$$

$$\dot{\rho}_{ba} = -i\omega_{ba}\rho_{ba} + \frac{i}{\hbar}(\rho_{bb} - \rho_{aa})V(t)_{ba}. \quad (3.16)$$

donde: $\dot{\rho}_{ab}^* = \dot{\rho}_{ba}$. Estas ecuaciones no consideran el término estocástico ξ , el mismo que será introducido en lo que sigue.

3.3.2. Tiempos de relajación T_1 y T_2

Hasta el momento solo se han considerado los términos asociados a la interacción entre el sistema molecular y el campo electromagnético, restaría considerar los términos de relajación entre la interacción del sistema y el reservorio térmico, dados por el segundo y tercer término de la Ec.(3.4). Tomando la Ec.(3.5) que representa la ecuación maestra de Pauli se analiza la relajación que induce el reservorio en el sistema de dos niveles [7, 35].

$$\dot{\rho}_{aa} = W_{ab}\rho_{bb} - W_{ba}\rho_{aa},$$

$$\dot{\rho}_{bb} = W_{ba}\rho_{aa} - W_{ab}\rho_{bb},$$

Se considera $\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1$, indica la conservación del número de partículas en el sistema de dos niveles, con lo que:

$$\dot{\rho}_{aa} = -W_{ba} + (W_{ab} + W_{ba})\rho_{bb} = \frac{\rho_{bb}}{T_1},$$

$$\dot{\rho}_{bb} = -W_{ba} - (W_{ab} + W_{ba})\rho_{bb} = -\frac{\rho_{bb}}{T_1},$$

donde $T_1 = \frac{1}{W_{ab}+W_{ba}}$ es el tiempo de relajación longitudinal y se ha despreciado el término W_{ba} que indica la probabilidad por unidad de tiempo asociada a la transición del estado $|a\rangle$ al estado $|b\rangle$ bajo el efecto del reservorio térmico en el sistema, la cual es sumamente baja. Se define $T_2 = \frac{1}{\gamma_{12}}$ como el tiempo de relajación transversal² [5].

$$\dot{\rho}_{aa} = \frac{\rho_{bb}}{T_1} - \frac{i}{\hbar}(V(t)_{ab}\rho_{ba} - \rho_{ab}V(t)_{ba}), \quad (3.17)$$

²Los tiempos de relajación longitudinal y transversal deben su nombre a que en el trabajo original de Bloch, el primero estaba asociado al decaimiento de la componente de la magnetización en el eje z y el segundo estaba asociado al decaimiento de las componentes de magnetización en el plano xy, que al interactuar con un campo magnético se orientaban de forma longitudinal y transversal respectivamente [7, 34].

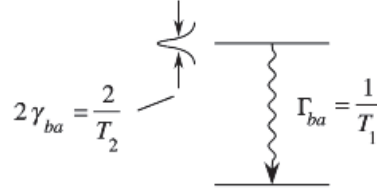


Figura 3.1: Diagrama del sistema de dos niveles indicando los parámetros de relajación. Tomado y adaptado de Ref. 1

$$\dot{\rho}_{bb} = -\frac{\rho_{bb}}{T_1} - \frac{i}{\hbar}(V(t)_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V(t)_{ab}), \quad y \quad (3.18)$$

$$\dot{\rho}_{ab} = \left(i\omega_{ba} - \frac{1}{T_2}\right)\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar}(\rho_{bb} - \rho_{aa})V(t)_{ab}. \quad (3.19)$$

restando la ecuaciones (3.17) y (3.18), y definiendo la diferencia de poblaciones como $\rho_D = \rho_{bb} - \rho_{aa}$ se tendrá:

$$\dot{\rho}_D = -\frac{2\rho_{bb}}{T_1} - \frac{2i}{\hbar}(V(t)_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V(t)_{ab}), \quad y \quad (3.20)$$

$$\dot{\rho}_{ab} = \left(i\omega_{ba} - \frac{1}{T_2}\right)\rho_{ab} - \frac{i}{\hbar}(\rho_{bb} - \rho_{aa})V(t)_{ab}. \quad (3.21)$$

La interpretación física de T_1 y T_2 se comprende a través de la distinta naturaleza de los mecanismos de relajación. Existe una transferencia de energía desde el sistema al reservorio térmico, que induce una disminución de la población del estado excitado gracias a las transiciones de éste al estado inferior, causando un cambio en la diferencia de poblaciones ρ_D [7]. El tiempo de relajación longitudinal (T_1) está asociado al tiempo necesario para que el sistema alcance el equilibrio termodinámico con sus alrededores [7].

Otro mecanismo de relajación está asociado a la pérdida de coherencia entre los momentos dipolares inducidos por el campo electromagnético. El tiempo de relajación transversal T_2 es el tiempo que tardan los momentos dipolares en orientarse de forma completamente aleatoria [1, 7].

La interacción con el reservorio genera un desplazamiento aleatorio de la frecuencia natural del sistema debido a las colisiones elásticas entre las moléculas del sistema molecular y el reservorio [5]. Este proceso se puede modelar al insertar una variable estocástica dependiente del tiempo $\xi(t)$ a la frecuencia natural del sistema: $\xi(t) = \omega_{ba} + \varepsilon(t)$ [5, 12-14].

3.4. COMPONENTES DE FOURIER DE LAS POBLACIONES Y COHERENCIAS ASOCIADAS A LOS ELEMENTOS DE LA MATRIZ DE DENSIDAD

La conservación del número de partículas debe satisfacerse al considerar un sistema cerrado, por lo que:

$$\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1, \quad (3.22)$$

o equivalentemente,

$$2\rho_{bb} = (\rho_{bb} - \rho_{aa}) + 1,$$

se reemplaza esta última expresión en la Ec.(3.20) y se tiene:

$$\dot{\rho}_D = -\frac{(\rho_{bb} - \rho_{aa}) - (-1)}{T_1} - \frac{2i}{\hbar}(V(t)_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V(t)_{ab}),$$

donde (-1) es interpretado como la diferencia de población en equilibrio, es decir

$$(\rho_{bb} - \rho_{aa})^{eq} = -1.$$

En ausencia del estímulo del campo el nivel $|b\rangle$ está despoblado y el nivel $|a\rangle$ está completamente poblado por lo que $\rho_{aa} = 1$.

Con lo que:

$$\frac{d\rho_{ab}}{dt} = \frac{d\rho_{ba}^*}{dt},$$

$$\dot{\rho}_{ab} = \left(i\zeta(t) - \frac{1}{T_2} \right) \rho_{ab} - \frac{i}{\hbar}\rho_D V(t)_{ab}, \quad (3.23)$$

$$\dot{\rho}_D = -\frac{(\rho_D - \rho_D^{eq})}{T_1} - \frac{2i}{\hbar}(V(t)_{ba}\rho_{ab} - \rho_{ba}V(t)_{ab}). \quad (3.24)$$

3.4. Componentes de Fourier de las poblaciones y coherencias asociadas a los elementos de la matriz de densidad

La presente sección tiene como objetivo presentar el cálculo explícito de las EOEB que describen la dinámica del sistema molecular a través de las componentes de Fourier asociadas a la coherencia y a las poblaciones [5, 12-14, 34]. Existen dos maneras de resolver el problema: en el dominio del tiempo y en el dominio de frecuencias, en este trabajo se resolverá en el dominio de frecuencias por facilidad [1, 2, 5, 34].

Se consideran las EOEB, deducidas en la sección 3.3.

$$\dot{\rho}_{ba} = - \left(i\zeta(t) + \frac{1}{T_2} \right) \rho_{ba} + \frac{i}{\hbar} \rho_D V_{ba}, \quad (3.25)$$

$$\dot{\rho}_{ab} = \left(i\zeta(t) - \frac{1}{T_2} \right) \rho_{ab} - \frac{i}{\hbar} \rho_D V_{ab}, \quad (3.26)$$

$$\dot{\rho}_D = -\frac{\rho_D - \rho_D^{eq}}{T_1} - \frac{2i}{\hbar} V_{ba} \rho_{ab} + \frac{2i}{\hbar} V_{ab} \rho_{ba}. \quad (3.27)$$

Se encuentran las componentes de Fourier que oscilan a las frecuencia de interés asociadas a las coherencias y poblaciones.

En las ecuaciones (3.25-3.27) los términos del lado derecho poseen la dependencia temporal de forma sinusoidal a través del potencial de interacción $V_{ab} = -\mu_{ab} E(z) e^{-i\omega t}$, en la solución de estado estacionario estas ecuaciones son periódicas, con período $\frac{2\pi}{\omega}$, con lo cual se puede expandir a los elementos de la matriz de densidad $\{\rho_D, \rho_{ab}, \rho_{ba}\}$ en series de Fourier:

$$\rho_{ba}(t) = \sum_n \rho_{ba}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (3.28)$$

$$\rho_{ab}(t) = \sum_n \rho_{ab}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad (3.29)$$

$$\rho_D(t) = \sum_n \rho_D(n\Delta) e^{-in\Delta t} \quad (3.30)$$

estas expresiones se reemplazan en las ecuaciones (3.25-3.27) para encontrar las componentes de Fourier.

3.4.1. Componentes de Fourier asociadas a las coherencias

Se usa la siguiente expresión para el campo $E(t)$:

$$E(t) = \sum_{n=1}^3 E_n(\omega_n) e^{-i\omega_n t} = E_1(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} + E_2(\omega_2) e^{-i\omega_2 t} + E_3(\omega_3) e^{-i\omega_3 t} + c.c.$$

donde: $E_n(\omega_n) = \tilde{E}_n e^{ik_n z + \phi}$.

Se analizan las propiedades ópticas en un régimen no local, y se considera la propagación del haz a lo largo del camino óptico y se considera la generación de un tercer campo: el campo de señal de mezcla de cuatro ondas $E_3(\omega_3)$.

3.4. COMPONENTES DE FOURIER DE LAS POBLACIONES Y COHERENCIAS ASOCIADAS A LOS ELEMENTOS DE LA MATRIZ DE DENSIDAD

En este apartado se calculan las componentes no diagonales $\{\rho_{ab}, \rho_{ba}\}$ de la matriz asociada al operador de densidad, para cada una de las frecuencias de interés $\{\omega_1, \omega_2, \omega_3\}$.

Se considera la ecuación (3.25) en la cual serán reemplazadas las ecuaciones (3.28) y (3.30), que representan las componentes de Fourier de la coherencia y de la diferencia de población, respectivamente.

Componente ρ_{ba} :

$$\begin{aligned} \sum_n \rho_{ba}(\omega_n)(-i\omega_n)e^{-i\omega_n t} = \\ - \left(i\tilde{\zeta}(t) + \frac{1}{T_2} \right) \sum_n \rho_{ba}(\omega_n)e^{-i\omega_n t} + \frac{i}{\hbar} \sum_n \rho_D(n\Delta)e^{-in\Delta t} V_{ba}, \\ \sum_n \left[-i\omega_n + \left(i\tilde{\zeta}(t) + \frac{1}{T_2} \right) \right] \rho_{ba}(\omega_n)e^{-i\omega_n t} = \frac{i}{\hbar} \sum_n \rho_D(n\Delta)e^{-in\Delta t} (\mu_{ba} E(t)). \end{aligned}$$

Se reemplaza la expresión del campo total, y se llega a

$$\begin{aligned} \sum_n \left[\frac{1}{T_2} + i(\tilde{\zeta}(t) - \omega_n) \right] \rho_{ba}(\omega_n)e^{-i\omega_n t} = \frac{i}{\hbar} \sum_n \rho_D(n\Delta)e^{-in\Delta t} \mu_{ba} (E_1(\omega_1)e^{-i\omega_1 t} \\ + E_2(\omega_2)e^{-i\omega_2 t} + E_3(\omega_3)e^{-i\omega_3 t} + c.c.). \end{aligned}$$

Al aplicar la aproximación de la onda rotante, los términos antiresonantes se desprecian:

$$\begin{aligned} \sum_n \left[\frac{1}{T_2} + i(\tilde{\zeta}(t) - \omega_n) \right] \rho_{ba}(\omega_n)e^{-i\omega_n t} = \frac{i}{\hbar} \sum_n [\rho_D(n\Delta)e^{-in\Delta t} \mu_{ba} E_1(\omega_1)e^{-i\omega_1 t} \\ + \rho_D(n\Delta)e^{-in\Delta t} \mu_{ba} E_2(\omega_2)e^{-i\omega_2 t} \\ + \rho_D(n\Delta)e^{-in\Delta t} \mu_{ba} E_3(\omega_3)e^{-i\omega_3 t}]. \end{aligned}$$

al simplificar los términos exponenciales y definiendo a $\Omega_n = \frac{\mu_{ba} E_n(t)}{\hbar}$ con $n = \{1, 2, 3\}$, como la frecuencia de Rabi del sistema [1, 36], se tiene:

$$\begin{aligned} \sum_n \left[\frac{1}{T_2} + i(\tilde{\zeta}(t) - \omega_n) \right] \rho_{ba}(\omega_n)e^{-i\omega_n t} = \sum_n \rho_D(n\Delta) [i\Omega_1 e^{-i(n\Delta + \omega_1)t} \\ + i\Omega_2 e^{-i(n\Delta + \omega_2)t} + i\Omega_3 e^{-i(n\Delta + \omega_3)t}]. \end{aligned} \quad (3.31)$$

De esta última ecuación se obtiene la componente de Fourier asociada a la coherencia $\rho_{ba}(\omega_n)$ que oscila a: $\{\omega_1, \omega_2 \text{ y } \omega_3\}$, considerando que el haz de bombeo está a todos los órdenes, el haz de prueba a segundo orden y la señal a primer orden. Se desprecian los términos en los que el haz de prueba y el haz de señal aparezcan más de dos y una vez, respectivamente.

Componente de Fourier de ρ_{ba} a la frecuencia ω_3

$$\left[\frac{1}{T_2} + i(\zeta(t) - \omega_3) \right] \rho_{ba}(\omega_3) e^{-i\omega_3 t} = i\Omega_1 \rho_D(\Delta) e^{-i(\omega_3)t} + i\Omega_3 \rho_D^{dc} e^{-i(\omega_3)t},$$

definiendo: $D_i = \left[\frac{1}{T_2} + i(\zeta(t) - \omega_i) \right]$ y cancelando los términos exponenciales:

$$D_3 \rho_{ba}(\omega_3) = i\Omega_1 \rho_D(\Delta) + i\Omega_3 \rho_D^{dc}. \quad (3.32)$$

Componente de Fourier de ρ_{ba} a la frecuencia ω_1

$$\begin{aligned} \left[\frac{1}{T_2} + i(\zeta(t) - \omega_1) \right] \rho_{ba}(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} &= i\Omega_1 \rho_D^{dc} e^{-i(\omega_1)t} \\ &+ i\Omega_2 \rho_D(\Delta) e^{-i(\omega_1)t} + i\Omega_3 \rho_D(-\Delta) e^{-i(\omega_1)t}, \end{aligned}$$

$$D_1 \rho_{ba}(\omega_1) = i\Omega_1 \rho_D^{dc} + i\Omega_2 \rho_D(\Delta) + i\Omega_3 \rho_D(-\Delta). \quad (3.33)$$

Componente de Fourier de ρ_{ba} a la frecuencia ω_2

$$\left[\frac{1}{T_2} + i(\zeta(t) - \omega_2) \right] \rho_{ba}(\omega_2) e^{-i\omega_2 t} = i\Omega_1 \rho_D(-\Delta) e^{-i(\omega_2)t} + i\Omega_2 \rho_D^{dc} e^{-i(\omega_2)t},$$

$$D_2 \rho_{ba}(\omega_2) = i\Omega_1 \rho_D(-\Delta) + i\Omega_2 \rho_D^{dc}. \quad (3.34)$$

Se considera la ecuación (3.26) en la cual serán reemplazadas las ecuaciones (3.29) y (3.30), que representan las componentes de Fourier de la coherencia y de la diferencia de población, respectivamente. El cálculo de esta componente es similar al realizado previamente para ρ_{ba} .

Componente ρ_{ab} :

$$\begin{aligned} \sum_n \left[(-i\omega_n) - \left(i\zeta(t) - \frac{1}{T_2} \right) \right] \rho_{ab}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} &= \sum_n \rho_D(n\Delta) (-i\Omega_1^* e^{-i(n\Delta - \omega_1)t} \\ &- i\Omega_2^* e^{-i(n\Delta - \omega_2)t} - i\Omega_3^* e^{-i(n\Delta - \omega_3)t}), \end{aligned} \quad (3.35)$$

De esta última ecuación se obtienen la componente de Fourier asociada a la coherencia $\rho_{ab}(\omega_n)$ que oscila a: $\{\omega_1, \omega_2 \text{ y } \omega_3\}$, considerando que el haz de bombeo está a todos los órdenes, el haz de prueba a segundo orden y la señal a primer orden. Se despreciarán los términos en los que el haz de prueba y el haz de señal aparezcan más de dos y una vez respectivamente.

Componente de Fourier de ρ_{ab} a la frecuencia $-\omega_1$

$$\begin{aligned} \left[\frac{1}{T_2} - i(\zeta(t) - \omega_1) \right] \rho_{ab}(-\omega_1) e^{i\omega_1 t} &= -i\rho_D^{dc} \Omega_1^* e^{i(\omega_1)t} \\ &- i\rho_D(-\Delta) \Omega_2^* e^{i(\omega_1)t} - i\rho_D(\Delta) \Omega_3^* e^{i(\omega_1)t}, \end{aligned}$$

$$D_1^* \rho_{ab}(-\omega_1) = -i\rho_D^{dc} \Omega_1^* - i\rho_D(-\Delta) \Omega_2^* - i\rho_D(\Delta) \Omega_3^*. \quad (3.36)$$

Componente de Fourier de ρ_{ba} a la frecuencia $-\omega_2$

$$\left[\frac{1}{T_2} - i(\xi(t) - \omega_2) \right] \rho_{ab}(-\omega_2) e^{i\omega_2 t} = -i\rho_D(\Delta) \Omega_1^* e^{i(\omega_2)t} - i\rho_D^{dc} \Omega_2^* e^{i(\omega_2)t},$$

$$D_2^* \rho_{ab}(-\omega_2) = -i\rho_D(\Delta) \Omega_1^* - i\rho_D^{dc} \Omega_2^*. \quad (3.37)$$

Componente de Fourier de ρ_{ba} a la frecuencia $-\omega_3$

$$\left[\frac{1}{T_2} - i(\xi(t) - \omega_3) \right] \rho_{ab}(-\omega_3) e^{i\omega_3 t} = -i\rho_D(-\Delta) \Omega_1^* e^{i(\omega_3)t} - i\rho_D^{dc} \Omega_3^* e^{i(\omega_3)t},$$

$$D_3^* \rho_{ab}(-\omega_3) = -i\rho_D(-\Delta) \Omega_1^* - i\rho_D^{dc} \Omega_3^*. \quad (3.38)$$

3.4.2. Componente de Fourier asociada a la diferencia de población.

En este apartado se calcula la componente diagonal ($\{\rho_D\}$) de la matriz asociada al operador de densidad, para cada una de las frecuencias de interés $\{\omega_1, \omega_2, \omega_3\}$. Se considera la ecuación (3.27) en la cual serán reemplazadas las ecuaciones (3.28) y (3.29), que representan las componentes de Fourier de la coherencia.

Componente ρ_D :

$$\begin{aligned} & \sum_n \rho_D(n\Delta) (-in\Delta) e^{-in\Delta t} = \\ & = -\frac{2i}{\hbar} \mu_{ba} (E_1(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} + E_2(\omega_2) e^{-i\omega_2 t} + E_3(\omega_3) e^{-i\omega_3 t}) \sum_n \rho_{ab}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \\ & + \frac{2i}{\hbar} \mu_{ab} (E_1^*(\omega_1) e^{i\omega_1 t} + E_2^*(\omega_2) e^{i\omega_2 t} + E_3^*(\omega_3) e^{i\omega_3 t}) \sum_n \rho_{ba}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \\ & - \frac{1}{T_1} \sum_n \rho_D(n\Delta) e^{-in\Delta t} + \frac{\rho_D^{eq}}{T_1}. \end{aligned}$$

3.4. COMPONENTES DE FOURIER DE LAS POBLACIONES Y COHERENCIAS ASOCIADAS A LOS ELEMENTOS DE LA MATRIZ DE DENSIDAD

usando la definición de la frecuencia de Rabi Ω_n con $\{n = 1, 2, 3\}$

$$\begin{aligned} \sum_n \rho_D(n\Delta) e^{-in\Delta t} \left(-in\Delta + \frac{1}{T_1} \right) &= \frac{\rho_D^{eq}}{T_1} + \sum_n [-2i\Omega_1 e^{-i(\omega_n + \omega_1)t} \rho_{ab}(\omega_n) \\ &\quad - 2i\Omega_2 e^{-i(\omega_n + \omega_2)t} \rho_{ab}(\omega_n) - 2i\Omega_3 e^{-i(\omega_n + \omega_3)t} \rho_{ab}(\omega_n) \\ &\quad + 2i\Omega_1^* e^{-i(\omega_n - \omega_1)t} \rho_{ba}(\omega_n) + 2i\Omega_2^* e^{-i(\omega_n - \omega_2)t} \rho_{ba}(\omega_n) \\ &\quad + 2i\Omega_3^* e^{-i(\omega_n - \omega_3)t} \rho_{ba}(\omega_n)]. \end{aligned} \quad (3.39)$$

De esta última ecuación se obtiene la componente de Fourier asociada a la diferencia de población $\rho_D(n\Delta)$ que oscila a la frecuencia: $\{\Delta, -\Delta\}$, donde $\Delta = \omega_1 - \omega_2$ es el factor de sintonización, ρ_D^{eq} es el valor de la diferencia de población en ausencia del estímulo del campo.

Componente de Fourier de ρ_D a la frecuencia Δ

$$\begin{aligned} \rho_D(\Delta) e^{-i\Delta t} \left(-i\Delta + \frac{1}{T_1} \right) &= -2i\Omega_1 e^{-i\Delta t} \rho_{ab}(-\omega_2) - 2i\Omega_3 e^{-i\Delta t} \rho_{ab}(-\omega_1) \\ &\quad + 2i\Omega_1^* e^{-i\Delta t} \rho_{ba}(\omega_3) + 2i\Omega_2^* e^{-i\Delta t} \rho_{ba}(\omega_1), \end{aligned}$$

definiendo: $\Gamma_n = \left(-in\Delta + \frac{1}{T_1} \right)$,

$$\Gamma_1 \rho_D(\Delta) = -2i\Omega_1 \rho_{ab}(-\omega_2) - 2i\Omega_3 \rho_{ab}(-\omega_1) + 2i\Omega_1^* \rho_{ba}(\omega_3) + 2i\Omega_2^* \rho_{ba}(\omega_1). \quad (3.40)$$

Componente de Fourier de ρ_D a la frecuencia $-\Delta$

$$\begin{aligned} \rho_D(-\Delta) e^{i\Delta t} \left(i\Delta + \frac{1}{T_1} \right) &= -2i\Omega_1 e^{i\Delta t} \rho_{ba}(-\omega_3) - 2i\Omega_2 e^{i\Delta t} \rho_{ab}(-\omega_1) \\ &\quad + 2i\Omega_1^* e^{i\Delta t} \rho_{ba}(\omega_2) + 2i\Omega_3^* e^{-i\Delta t} \rho_{ba}(\omega_1), \end{aligned}$$

$$\Gamma_1^* \rho_D(-\Delta) = -2i\Omega_1 \rho_{ab}(-\omega_3) - 2i\Omega_2 \rho_{ab}(-\omega_1) + 2i\Omega_1^* \rho_{ba}(\omega_2) + 2i\Omega_3^* \rho_{ba}(\omega_1). \quad (3.41)$$

Por último se calcula la componente de Fourier asociada a la diferencia de población cuando ésta es constante, es decir: $\rho_D = cte$. Se considera la ecuación (3.27) y en esta se reemplazan las ecuaciones (3.28) y (3.29).

Componente ρ_D^{dc} :

$$\frac{\rho_D^{dc}}{T_1} = \frac{\rho_D^{eq}}{T_1} - 2i\Omega_1 \rho_{ab}(-\omega_1) - 2i\Omega_2 \rho_{ab}(-\omega_2) + 2i\Omega_1^* \rho_{ba}(\omega_1) + 2i\Omega_2^* \rho_{ba}(\omega_2). \quad (3.42)$$

El principal objetivo del presente proyecto de investigación es estudiar el efecto del

3.4. COMPONENTES DE FOURIER DE LAS POBLACIONES Y COHERENCIAS ASOCIADAS A LOS ELEMENTOS DE LA MATRIZ DE DENSIDAD

haz de prueba en la respuesta del sistema molecular al ser considerado como una haz no débil. Se analizan los nuevos términos asociados al 2^{do} orden del haz de prueba, para ello se añade el coeficiente $\{''a''\}$ en las ecuaciones de mayor relevancia, que asumirá los valores de $\{0, 1\}$, para distinguir entre los efectos inducidos por el 1^{er} o 2^{do} orden en el haz de prueba, respectivamente.

Al agrupar las ecuaciones halladas previamente se llega al siguiente sistema de ecuaciones acopladas:

$$D_3\rho_{ba}(\omega_3) = i\Omega_1\rho_D(\Delta) + i\Omega_3\rho_D^{dc}, \quad (3.43)$$

$$D_3^*\rho_{ab}(-\omega_3) = -i\Omega_1^*\rho_D(-\Delta) - i\Omega_3^*\rho_D^{dc}, \quad (3.44)$$

$$D_2\rho_{ba}(\omega_2) = i\Omega_1\rho_D(-\Delta) + i\Omega_2\rho_D^{dc}, \quad (3.45)$$

$$D_2^*\rho_{ab}(-\omega_2) = -i\Omega_1^*\rho_D(\Delta) - i\Omega_2^*\rho_D^{dc}, \quad (3.46)$$

$$D_1^*\rho_{ab}(-\omega_1) = -i\rho_D^{dc}\Omega_1^* - a * i\rho_D(-\Delta)\Omega_2^* - a * i\rho_D(\Delta)\Omega_3^*, \quad (3.47)$$

$$D_1\rho_{ba}(\omega_1) = i\Omega_1\rho_D^{dc} + a * i\Omega_2\rho_D(\Delta) + a * i\Omega_3\rho_D(-\Delta), \quad (3.48)$$

$$\Gamma_1\rho_D(\Delta) = -2i\Omega_1\rho_{ab}(-\omega_2) - 2i\Omega_3\rho_{ab}(-\omega_1) + 2i\Omega_1^*\rho_{ba}(\omega_3) + 2i\Omega_2^*\rho_{ba}(\omega_1), \quad (3.49)$$

$$\Gamma_1^*\rho_D(-\Delta) = -2i\Omega_1\rho_{ab}(-\omega_3) - 2i\Omega_2\rho_{ab}(-\omega_1) + 2i\Omega_1^*\rho_{ba}(\omega_2) + 2i\Omega_3^*\rho_{ba}(\omega_1), \quad (3.50)$$

$$\frac{\rho_D^{dc}}{T_1} - \frac{\rho_D^{eq}}{T_1} = -2i\Omega_1\rho_{ab}(-\omega_1) - a * 2i\Omega_2\rho_{ab}(-\omega_2) + 2i\Omega_1^*\rho_{ba}(\omega_1) + a * 2i\Omega_2^*\rho_{ba}(\omega_2). \quad (3.51)$$

3.4.3. Solución del sistema de ecuaciones acopladas (3.43 - 3.51)

La solución del sistema de ecuaciones acopladas permite obtener expresiones para los términos $\rho_D(\Delta)$, $\rho_D(-\Delta)$ y ρ_D^{dc} .

Cálculo del término $\rho_D(\Delta)$

Se reemplazan las ecuaciones (3.43) y (3.46-3.48) en la Ec.(3.49), para obtener:

$$\begin{aligned} \Gamma_1 \rho_D(\Delta) = & -2i\Omega_1 \left(-\frac{i\rho_D(\Delta)\Omega_1^*}{D_2^*} - \frac{i\rho_D^{dc}\Omega_2^*}{D_2^*} \right) - 2i\Omega_3 \left(-\frac{i\rho_D^{dc}\Omega_1^*}{D_1^*} - \frac{i\rho_D(-\Delta)\Omega_2^*}{D_1^*} \right. \\ & \left. - \frac{i\rho_D(\Delta)\Omega_3^*}{D_1^*} \right) + 2i\Omega_1^* \left(\frac{i\Omega_1\rho_D(\Delta)}{D_3} + \frac{i\Omega_3\rho_D^{dc}}{D_3} \right) \\ & + 2i\Omega_2^* \left(\frac{i\Omega_1\rho_D^{dc}}{D_1} + \frac{i\Omega_2\rho_D(\Delta)}{D_1} + \frac{i\Omega_3\rho_D(-\Delta)}{D_1} \right) \end{aligned}$$

al agrupar términos:

$$\begin{aligned} \rho_D(\Delta) \left(\Gamma_1 + \frac{2|\Omega_1|^2}{D_3} + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1} + \frac{2|\Omega_1|^2}{D_2^*} + \frac{2|\Omega_3|^2}{D_1^*} \right) = \\ -\rho_D^{dc} \left(\frac{2\Omega_1\Omega_2^*}{D_2^*} - \frac{2\Omega_1^*\Omega_3}{D_1^*} - \frac{2\Omega_1^*\Omega_3}{D_3} - \frac{2\Omega_2^*\Omega_1}{D_1} \right) - \rho_D(-\Delta) \left(\frac{2\Omega_2^*\Omega_3}{D_1^*} - \frac{2\Omega_2^*\Omega_3}{D_1} \right). \end{aligned}$$

Se tiene que:

$$J\rho_D(\Delta) = K\rho_D^{dc} + H\rho_D(-\Delta),$$

cuyos coeficientes son

$$\begin{aligned} J &= \left(\Gamma_1 + \frac{2|\Omega_1|^2}{D_3} + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1} + \frac{2|\Omega_1|^2}{D_2^*} + \frac{2|\Omega_3|^2}{D_1^*} \right), \\ K &= - \left(\frac{2\Omega_1\Omega_2^*}{D_2^*} - \frac{2\Omega_1^*\Omega_3}{D_1^*} - \frac{2\Omega_1^*\Omega_3}{D_3} - \frac{2\Omega_2^*\Omega_1}{D_1} \right), \\ H &= - \left(\frac{2\Omega_2^*\Omega_3}{D_1^*} - \frac{2\Omega_2^*\Omega_3}{D_1} \right). \end{aligned}$$

Cálculo del término $\rho_D(-\Delta)$

Se reemplazan las ecuaciones (3.44, 3.45, 3.47 y 3.48) en la Ec.(3.50), para obtener:

$$\begin{aligned} \Gamma_1^* \rho_D(-\Delta) = & 2i\Omega_1^* \left(\frac{i\rho_D(-\Delta)\Omega_1}{D_2} + \frac{i\rho_D^{dc}\Omega_2}{D_2} \right) + 2i\Omega_3^* \left(\frac{i\rho_D^{dc}\Omega_1}{D_1} \right. \\ & \left. + \frac{i\rho_D(\Delta)\Omega_2}{D_1} + \frac{i\rho_D(-\Delta)\Omega_3}{D_1} \right) - 2i\Omega_1 \left(-\frac{i\Omega_1^*\rho_D(-\Delta)}{D_3^*} - \frac{i\Omega_3^*\rho_D^{dc}}{D_3^*} \right) \\ & - 2i\Omega_2 \left(-\frac{i\Omega_1^*\rho_D^{dc}}{D_1^*} - \frac{i\Omega_2^*\rho_D(-\Delta)}{D_1^*} - \frac{i\Omega_3^*\rho_D(\Delta)}{D_1^*} \right), \end{aligned}$$

3.4. COMPONENTES DE FOURIER DE LAS POBLACIONES Y COHERENCIAS ASOCIADAS A LOS ELEMENTOS DE LA MATRIZ DE DENSIDAD

al agrupar términos:

$$\begin{aligned} \rho_D(-\Delta) \left(\Gamma_1^* + \frac{2|\Omega_1|^2}{D_3^*} + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1^*} + \frac{2|\Omega_1|^2}{D_2} + \frac{2|\Omega_3|^2}{D_1} \right) = & - \left(\frac{2\Omega_2\Omega_3^*}{D_1} + \frac{2\Omega_2\Omega_3^*}{D_1^*} \right) \rho_D(\Delta) \\ & - \left(\frac{2\Omega_1^*\Omega_2}{D_2} + \frac{2\Omega_1\Omega_3^*}{D_1} + \frac{2\Omega_1\Omega_3^*}{D_3^*} \right. \\ & \left. + \frac{2\Omega_2\Omega_1^*}{D_1^*} \right) \rho_D^{dc}. \end{aligned}$$

Se tiene que:

$$L\rho_D(-\Delta) = M\rho_D^{dc} + N\rho_D(\Delta),$$

cuyos coeficientes son

$$\begin{aligned} L &= \left(\Gamma_1^* + \frac{2|\Omega_1|^2}{D_3^*} + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1^*} + \frac{2|\Omega_1|^2}{D_2} + \frac{2|\Omega_3|^2}{D_1} \right), \\ M &= - \left(\frac{2\Omega_1^*\Omega_2}{D_2} + \frac{2\Omega_1\Omega_3^*}{D_1} + \frac{2\Omega_1\Omega_3^*}{D_3^*} + \frac{2\Omega_2\Omega_1^*}{D_1^*} \right), \\ N &= - \left(\frac{2\Omega_2\Omega_3^*}{D_1} + \frac{2\Omega_2\Omega_3^*}{D_1^*} \right), \end{aligned}$$

se nota que: $J^* = L$, $K^* = M$ y $H^* = N$. De esta manera se llega a un conjunto de dos ecuaciones. En lo que sigue se expresarán a estas ecuaciones en función del término ρ_D^{dc} .

$$J\rho_D(\Delta) = K\rho_D^{dc} + H\rho_D(-\Delta), \quad (3.52)$$

$$J^*\rho_D(-\Delta) = K^*\rho_D^{dc} + H^*\rho_D(\Delta). \quad (3.53)$$

Despejando $\rho_D(-\Delta)$ de la Ec. (3.53) y reemplazando en (3.52):

$$\begin{aligned} J\rho_D(\Delta) &= H \left[\frac{K^*}{J^*}\rho_D^{dc} + \frac{H^*}{J^*}\rho_D(\Delta) \right] + K\rho_D^{dc}, \\ \rho_D(\Delta) &= \frac{(HK^* + KJ^*)}{(JJ^* - HH^*)}\rho_D^{dc}. \end{aligned}$$

Despejando $\rho_D(\Delta)$ de la Ec. (3.52) y reemplazando en (3.53):

$$\begin{aligned} J^*\rho_D(-\Delta) &= H^* \left[\frac{K}{J}\rho_D^{dc} + \frac{H}{J}\rho_D(-\Delta) \right] + K^*\rho_D^{dc}, \\ \rho_D(-\Delta) &= \frac{(H^*K + K^*J)}{(J^*J - H^*H)}\rho_D^{dc}. \end{aligned}$$

Se tiene el siguiente par de ecuaciones, que permiten el cálculo de ρ_D^{dc} :

$$\rho_D(\Delta) = \frac{(HK^* + KJ^*)}{(JJ^* - HH^*)}\rho_D^{dc}, \quad (3.54)$$

3.4. COMPONENTES DE FOURIER DE LAS POBLACIONES Y COHERENCIAS ASOCIADAS A LOS ELEMENTOS DE LA MATRIZ DE DENSIDAD

$$\rho_D(-\Delta) = \frac{(H^*K + K^*J)}{(J^*J - H^*H)} \rho_D^{dc}. \quad (3.55)$$

Reemplazando estas dos últimas expresiones en las ecuaciones (3.43, 3.45) y (3.48) se calculan de forma explícita los siguientes términos: $\rho_{ba}(\omega_1)$, $\rho_{ba}(\omega_2)$ y $\rho_{ba}(\omega_3)$.

$$\rho_{ba}(\omega_1) = i\Omega_1 \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} + i\Omega_2 \frac{(HK^* + KJ^*)}{(JJ^* - HH^*)} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} + i\Omega_3 \frac{(H^*K + K^*J)}{(J^*J - H^*H)} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1}, \quad (3.56)$$

$$\rho_{ba}(\omega_2) = i\Omega_1 \frac{(H^*K + K^*J)}{(J^*J - H^*H)} \frac{\rho_D^{dc}}{D_2} + i\Omega_2 \frac{\rho_D^{dc}}{D_2}, \quad (3.57)$$

$$\rho_{ba}(\omega_3) = i\Omega_1 \frac{(HK^* + KJ^*)}{(JJ^* - HH^*)} \frac{\rho_D^{dc}}{D_3} + i\Omega_3 \frac{\rho_D^{dc}}{D_3}. \quad (3.58)$$

En lo posterior se desarrolla el cálculo de los coeficientes para las ecuaciones (3.56 - 3.58). Se expresan de forma compacta los coeficientes J, K y H.

$$J = \Gamma_1 + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1} + 2|\Omega_1|^2 \left(\frac{1}{D_3} + \frac{1}{D_2^*} \right),$$

el término $\frac{2|\Omega_3|^2}{D_1^*}$ es anulado al considerar que el haz de señal está a primer orden.

$$K = -2\Omega_1\Omega_2^* \left(\frac{1}{D_1} + \frac{1}{D_2^*} \right) - 2\Omega_1^*\Omega_3 \left(\frac{1}{D_3} + \frac{1}{D_1^*} \right),$$

$$H = -2\Omega_2^*\Omega_3 \left(\frac{1}{D_1} + \frac{1}{D_1^*} \right).$$

Por facilidad, se definen los siguientes términos:

$$f_{n,-m} = \frac{1}{D_n} + \frac{1}{D_m^*},$$

$$\Psi_1 = \Gamma_1 + 2|\Omega_1|^2 f_{3,-2},$$

los coeficientes J, K y H quedan expresados como:

$$J = \Psi_1 + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1},$$

$$K = -2\Omega_1^*\Omega_3 f_{3,-1} - 2\Omega_1\Omega_2^* f_{1,-2},$$

$$H = -2\Omega_2^*\Omega_3 f_{1,-1}.$$

En lo que sigue se detalla el cálculo de los coeficientes de las ecuaciones (3.56 - 3.58).

$$HK^* = -2\Omega_2^*\Omega_3 f_{1,-1} (-2\Omega_1\Omega_3^* f_{1,-3} - 2\Omega_1^*\Omega_2 f_{2,-1})$$

$$= 4\Omega_1\Omega_2^*|\Omega_3|^2 f_{1,-1} f_{1,-3} + 4\Omega_1^*\Omega_3|\Omega_2|^2 f_{2,-1} f_{1,-1}$$

$$= 4\Omega_1^*\Omega_3|\Omega_2|^2 f_{2,-1} f_{1,-1},$$

al tomar el complejo conjugado:

$$\begin{aligned} H^*K &= 4\Omega_1\Omega_3^*|\Omega_2|^2f_{1,-2}f_{1,-1}. \\ KJ^* &= -2\Omega_1^*\Omega_3f_{3,-1} - 2\Omega_1\Omega_2^*f_{1,-2} \left(\Psi_1^* + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1^*} \right) \\ &= -2\Omega_1^*\Omega_3f_{3,-1}\Psi_1^* - 2\Omega_1\Omega_2^*f_{1,-2}\Psi_1^* - \frac{4\Omega_1^*\Omega_3|\Omega_2|^2f_{3,-1}}{D_1^*}, \end{aligned}$$

al tomar el complejo conjugado:

$$\begin{aligned} K^*J &= -2\Omega_1\Omega_3^*f_{1,-3}\Psi_1 - 2\Omega_1^*\Omega_2f_{2,-1}\Psi_1 - \frac{4\Omega_1\Omega_3^*|\Omega_2|^2f_{1,-3}}{D_1}. \\ JJ^* &= J^*J = \left(\Psi_1 + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1} \right) \left(\Psi_1^* + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1^*} \right) \\ &= |\Psi_1|^2 + \frac{2\Psi_1|\Omega_2|^2}{D_1^*} + \frac{2\Psi_1^*|\Omega_2|^2}{D_1}, \\ HH^* &= (-2\Omega_2^*\Omega_3f_{1,-1})(-2\Omega_2\Omega_3^*f_{1,-1}) \\ &= 4|\Omega_2|^2|\Omega_3|^2(f_{1,-1})^2. \end{aligned}$$

Este último término es anulado ya que el haz de señal se encuentra a primer orden.

A continuación se presentan las componentes de Fourier asociadas a la coherencia $\{\rho_{ba}(\omega_1), \rho_{ba}(\omega_2) \text{ y } \rho_{ba}(\omega_3)\}$. Se han identificado términos relacionados a los procesos de incoherencia, coherencia y acoplamiento que serán explicados al final de la sección.

Componente de Fourier de ρ_{ba} a la frecuencia (ω_3):

$$\rho_{ba}(\omega_3) = i\Omega_1 \frac{HK^*}{JJ^*} \frac{\rho_D^{dc}}{D_3} + i\Omega_1 \frac{K}{J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_3} + i\Omega_3 \frac{\rho_D^{dc}}{D_3},$$

$$\rho_{ba}(\omega_3) = \left(a * \frac{4i|\Omega_1|^2|\Omega_2|^2f_{2,-1}f_{1,-1}}{JJ^*} - \frac{2i|\Omega_1|^2f_{3,-1}}{J} \right) \frac{\Omega_3}{D_3} \rho_D^{dc} - \frac{2i\Omega_1^2\Omega_2^*f_{1,-2}}{JD_3} \rho_D^{dc} + i\Omega_3 \frac{\rho_D^{dc}}{D_3}, \quad (3.59)$$

con lo que:

$$\rho_{ba}(\omega_3) = (h_3^{coh} + h_3^{incoh})\Omega_3 + h_3^{coup}\Omega_1^2\Omega_2^*, \quad (3.60)$$

donde:

$$h_3^{incoh} = \frac{i\rho_D^{dc}}{D_3}, \quad h_3^{coup} = -\frac{2if_{1,-2}\rho_D^{dc}}{JD_3},$$

3.4. COMPONENTES DE FOURIER DE LAS POBLACIONES Y COHERENCIAS ASOCIADAS A LOS ELEMENTOS DE LA MATRIZ DE DENSIDAD

$$h_3^{coh} = \left(\frac{4i|\Omega_1|^2|\Omega_2|^2 f_{2,-1} f_{1,-1}}{JJ^*} - \frac{2i|\Omega_1|^2 f_{3,-1}}{J} \right) \frac{\rho_D^{dc}}{D_3}.$$

Componente de Fourier de ρ_{ba} a la frecuencia (ω_2):

$$\rho_{ba}(\omega_2) = i\Omega_1 \frac{H^* K}{J^* J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_2} + i\Omega_1 \frac{K^*}{J^*} \frac{\rho_D^{dc}}{D_2} + i\Omega_2 \frac{\rho_D^{dc}}{D_2},$$

$$\rho_{ba}(\omega_2) = a * \frac{4i\Omega_1^2 \Omega_3^* |\Omega_2|^2 f_{1,-2} f_{1,-1}}{J^* J D_2} \rho_D^{dc} - \frac{2i\Omega_1^2 \Omega_3^* f_{1,-3}}{J^* D_2} \rho_D^{dc} - \frac{2i|\Omega_1|^2 \Omega_2 f_{2,-1}}{J^* D_2} \rho_D^{dc} + i\Omega_2 \frac{\rho_D^{dc}}{D_2}, \quad (3.61)$$

identificando términos de coherencia, incoherencia y acoplamiento:

$$\rho_{ba}(\omega_2) = (h_2^{coh} + h_2^{incoh})\Omega_2 + h_2^{coup} \Omega_1^2 \Omega_3^*, \quad (3.62)$$

con:

$$h_2^{incoh} = \frac{i\rho_D^{dc}}{D_2}, \quad h_2^{coh} = \frac{2i|\Omega_1|^2 f_{2,-1}}{J^* D_2} \rho_D^{dc},$$

$$h_2^{coup} = \left(\frac{4i|\Omega_2|^2 f_{1,-2} f_{1,-1}}{J^* J} - \frac{2i f_{1,-3}}{J^*} \right) \frac{\rho_D^{dc}}{D_2}.$$

Componente de Fourier de ρ_{ba} a la frecuencia (ω_1):

$$\rho_{ba}(\omega_1) = i\Omega_1 \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} + i\Omega_2 \frac{HK^*}{JJ^*} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} + i\Omega_2 \frac{K}{J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} + i\Omega_3 \frac{H^* K}{J^* J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} + i\Omega_3 \frac{K^*}{J^*} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1},$$

$$\begin{aligned} \rho_{ba}(\omega_1) &= i\Omega_1 \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} + \frac{i\Omega_2}{JJ^*} (4\Omega_1^* \Omega_3 |\Omega_2|^2 f_{2,-1} f_{1,-1}) \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} \\ &+ \frac{i\Omega_2}{J} (-2\Omega_1^* \Omega_3 f_{3,-1} - 2\Omega_1 \Omega_2^* f_{1,-2}) \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} + \frac{i\Omega_3}{J^* J} (4\Omega_1 \Omega_3^* |\Omega_2|^2 f_{1,-2} f_{1,-1}) \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} \\ &+ \frac{i\Omega_3}{J^*} (-2\Omega_1 \Omega_3^* f_{1,-3} - 2\Omega_1^* \Omega_2 f_{2,-1}) \frac{\rho_D^{dc}}{D_1}, \end{aligned}$$

cancelando los términos de más alto orden tanto para el haz de prueba como para el haz de señal, se tiene:

$$\rho_{ba}(\omega_1) = i\Omega_1 \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} - a * \frac{2i\Omega_1 |\Omega_2|^2 f_{1,-2}}{J D_1} \rho_D^{dc} - a * \frac{2i\Omega_1^* \Omega_2 \Omega_3}{J D_1} (f_{3,-1} + f_{2,-1}) \rho_D^{dc}, \quad (3.63)$$

al identificar términos de coherencia, incoherencia y acoplamiento

$$\rho_{ba}(\omega_1) = (h_1^{coh} + h_1^{incoh})\Omega_1 + h_1^{coup} \Omega_1^* \Omega_2 \Omega_3, \quad (3.64)$$

con:

$$h_1^{incoh} = \frac{i\rho_D^{dc}}{D_1}, \quad h_1^{coh} = -\frac{2i|\Omega_2|^2 f_{1,-2}}{JD_1} \rho_D^{dc},$$

$$h_1^{coup} = -\frac{2i(f_{3,-1} + f_{2,-1})}{JD_1} \rho_D^{dc}.$$

La manera en la que se han expresado los términos en las distintas componentes de Fourier asociadas a la coherencia, permiten relacionar la parte **incoherente** con la disminución de la población relativa del sistema de dos niveles debido a los efectos de saturación del haz de bombeo, que surgen como resultado de la absorción dentro del material, la parte **coherente** resalta la interferencia entre el haz de bombeo y de prueba. Se describe el **acoplamiento** que sufren ambos haces dando origen a la formación de una red de difracción a través de la modulación espacial de las poblaciones [8, 12, 13].

3.4.4. Población de Equilibrio ρ_D^{dc}

El cálculo explícito del término ρ_D^{dc} se muestra en el apéndice A. Se presenta la expresión de este término junto a su interpretación física.

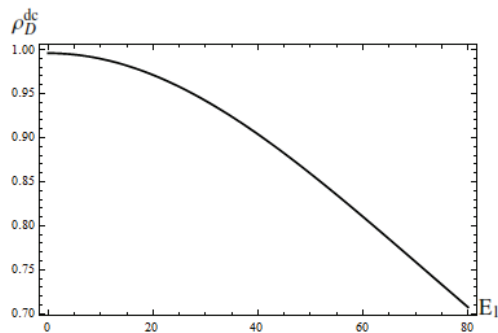
$$\rho_D^{dc} = \frac{\rho_D^{eq}}{\left(1 + \frac{4}{T_2^2 |D_\xi|^2} S_{12}\right)}, \quad (3.65)$$

donde: $S_{12} = S_1 + S_2 = |\Omega_1|^2 T_1 T_2 + |\Omega_2|^2 T_1 T_2$.

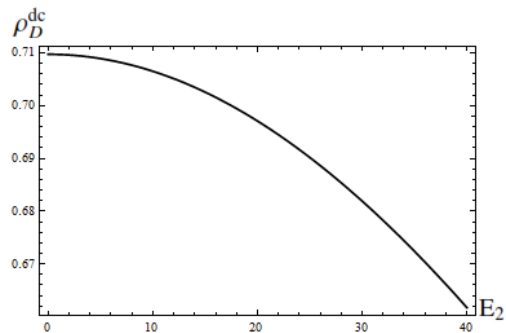
La interpretación física de la ecuación anterior se centra en la saturación que sufre el sistema debido a su interacción con el haz de bombeo y el haz de prueba. En la figura (3.2) se presentan los efectos del haz de bombeo E_1 y de prueba E_2 sobre la población del sistema ρ_D^{dc} . En la figura 3.2 a) se observa que el sistema se encuentra en equilibrio termodinámico ($\rho_D^{dc} = 1$) cuando no existe presencia del haz de bombeo, una vez su valor aumenta el sistema se desvía del equilibrio alcanzando una diferencia de población de menor valor, describiendo un aumento en la población del nivel superior como consecuencia de las transiciones generadas por el haz de alta intensidad. Las unidades del campo están dadas en [*Dina statC*⁻¹].

La figura 3.2 b) muestra el efecto que posee el haz de prueba en la variación de la población, se observa que en ausencia de éste el sistema está fuera del equilibrio termodinámico dado que el haz de bombeo ha producido transiciones hacia el nivel superior, generando una variación en la población del sistema. La figura 3.2 c) muestra la dependencia en los haces fuerte y débil de la componente de equilibrio.

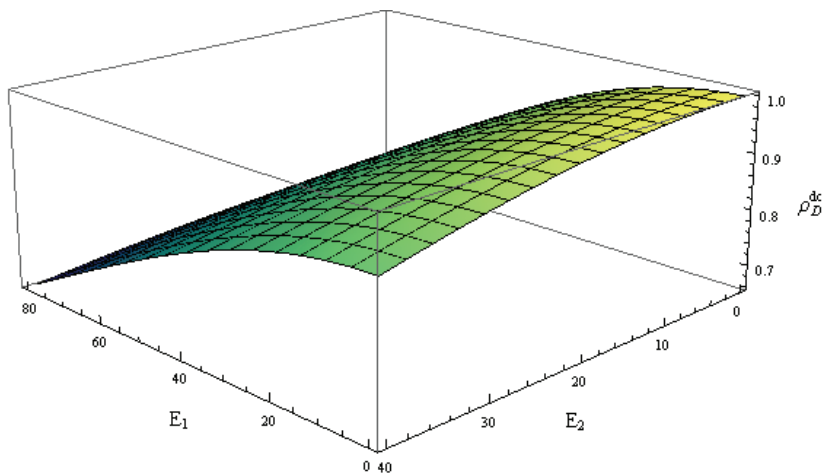
3.4. COMPONENTES DE FOURIER DE LAS POBLACIONES Y COHERENCIAS ASOCIADAS A LOS ELEMENTOS DE LA MATRIZ DE DENSIDAD



(a) Efecto del haz de bombeo sobre la población.



(b) Efecto del haz de prueba sobre la población.



(c) Variación de la población respecto al haz de bombeo y de prueba.

Figura 3.2: Variación de la componente de equilibrio respecto al haz: a) de bombeo, b) de prueba y c) respecto a ambos haces. Se muestran los efectos del haz de bombeo E_1 y de prueba E_2 sobre la población del sistema ρ_D^{dc} .

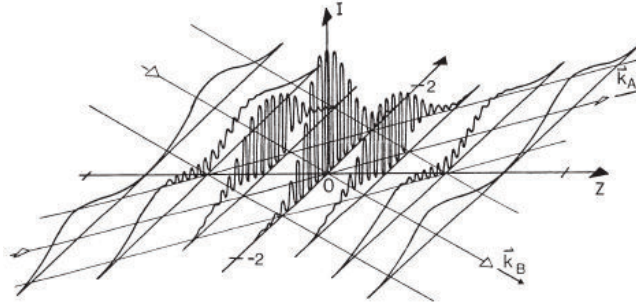


Figura 3.3: Distribución espacial de la intensidad de la luz en la región de interferencia de dos campos con vectores de onda K_A y K_B . Tomado y adaptado de Ref. 23.

3.5. Redes Dinámicas

En esta sección se analiza el origen de los cambios en las propiedades ópticas (coeficiente de absorción e índice de refracción) que tienen lugar gracias a la formación de redes dinámicas en la región de interferencia de los haces de bombeo y prueba. Se revisarán las similitudes y diferencias con respecto al modelo de la polarización no lineal.

3.5.1. Creación y Tipos de redes

A través de la interferencia de dos haces de alta intensidad es posible crear redes dinámicas en la región de interferencia a través de la modulación espacial que sufren las propiedades ópticas como consecuencia de la oscilación de poblaciones [8-11]. En la región de interferencia se genera una distribución espacial periódica de la intensidad de la luz, la figura (3.3) muestra la distribución de intensidad, la misma que ocasiona cambios en las propiedades ópticas del material situado en la región de interferencia. La modulación espacial de las propiedades ópticas actúan como una red de difracción. [1, 8-11].

La interacción de la radiación con la materia induce cambios en las propiedades ópticas del material debido a la excitación que éste sufre. Uno de los procesos que tienen lugar en la interacción luz-materia es la absorción. La cuál permite aumentar la población en estados electrónicos excitados [8]. Por lo tanto en la región espacial del patrón de interferencia se genera una red de densidad de población, en la que existe una diferencia de población periódica modulada por la distribución de la intensidad de la luz en la región de interferencia [1, 8].

Una vez el estímulo del campo electromagnético ha cesado el sistema retornará al equilibrio a través de la generación de redes secundarias. Primeramente la polarización inducida decaerá en un tiempo T_2 , debido a la pérdida de coherencia de los dipolos eléctricos, los electrones decaerán a los distintos estados electrónicos de menor energía, estados vibracionales y otros estados que pueden ser poblados hasta alcanzar el estado fundamental, éstos procesos son caracterizados por el tiempo T_1 que se encuentra en el rango de 10^{-15} y 10^{-7} [s], el estado resultante de éstos procesos usualmente posee un mayor tiempo de vida del orden de los micro segundos [1, 8]. La energía absorbida por el sistema será disipada a través de una red térmica que involucra procesos de difusión de calor que toman alrededor de 10^{-4} y 10^{-2} [s] para finalmente llegar al equilibrio [8].

Existen diferentes formas de detectar a las redes dinámicas, de forma particular esta investigación se enfoca en la auto-difracción que sufren los haces al incidir en la red.

3.5.2. Redes de Población

La modulación espacial que se genera en la región de interferencia debido a la absorción de luz está asociada a los cambios en las poblaciones de estados electrónicos excitados, a las orientaciones moleculares, y en el caso de semiconductores al incremento de la densidad de portadores de carga [1, 8]. La dinámica del sistema es descrita a través de las poblaciones [8].

A través de la interferencia de dos campos con vectores de onda \mathbf{K}_A y \mathbf{K}_B se genera una red de difracción que está caracterizada por el vector de red $\mathbf{q} = \mathbf{K}_A - \mathbf{K}_B$. La figura (3.4) presenta un esquema de la interferencia de éstos dos haces. La interferencia de los dos haces resultan en una variación periódica de la permitividad del material ϵ [1, 8]. Esta variación es la que actúa como red, difractando los haces incidentes y generando nuevos haces a distintas frecuencias [1, 8]. En nuestro caso el haz de bombeo y el haz de prueba generan la red de difracción a través de la interferencia representada por: $e^{i(\mathbf{K}_1 - \mathbf{K}_2)z}$ para luego generar el haz de señal con vector de onda $\mathbf{K}_3 = \mathbf{K}_1 - \mathbf{K}_2$ [8].

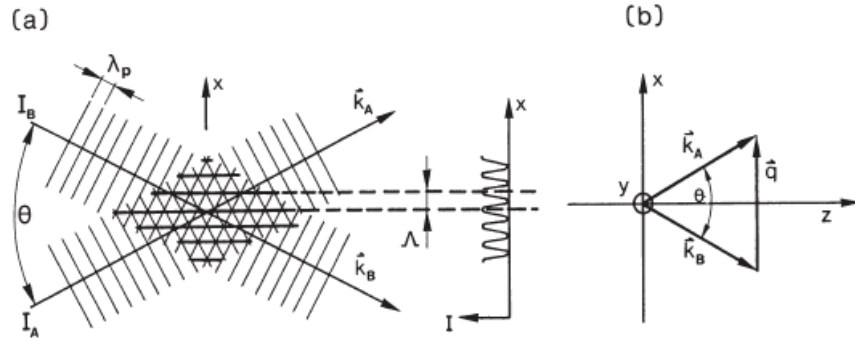


Figura 3.4: Red de difracción caracterizada por: $q = K_A - K_B$. Tomado y adaptado de Ref. 23.

3.5.3. Equivalencia entre: Red de población y Polarización No Lineal

En el primer caso se considera el problema de propagación en base al modelo de red de difracción, descrito por la siguiente ecuación:

$$\nabla^2 E - \frac{\epsilon + \Delta\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0, \quad (3.66)$$

donde $\Delta\epsilon$ representa la variación de la permitividad del medio provocada por el patrón de interferencia [1, 8].

En el segundo caso se tiene la descripción de la propagación del campo a través del modelo de la polarización no lineal, descrito por la siguiente ecuación:

$$\nabla^2 E - \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P^{NL}}{\partial t^2}. \quad (3.67)$$

donde P^{NL} es la polarización no lineal, que actúa como fuente de ondas difractadas, generando así el nuevo campo a la frecuencia $2\omega_1 - \omega_2$ [1, 8]. Gracias a las consideraciones de $\Delta\epsilon$ y P^{NL} las soluciones de ambos modelos son equivalentes, facilitando la interpretación de un gran número de efectos no lineales [1, 8].

3.5.4. Red de población inducida por los haces de Bombeo y de Prueba

En esta sección se usan conceptos antes expuestos para describir la generación del haz de señal oscilando a la frecuencia ω_3 a través de la red de difracción que

generan el haz de bombeo y de prueba.

La expresión para la diferencia de poblaciones entre los estados $|a\rangle$ y $|b\rangle$, está dada por la siguiente ecuación:

$$\rho_D^{dc} = \frac{\frac{\rho_D^{eq}}{T_1}}{\left(\frac{1}{T_1} - A - B - C - D - C^* - D^*\right)} \quad (3.68)$$

donde los coeficientes están definidos como:

$$A = -\frac{4}{T_2|D_\xi|^2} (|\Omega_1|^2 + |\Omega_2|^2); B = 32|\Omega_1|^2|\Omega_2|^2 \left(\frac{T_1}{T_2^2|D_\xi|^4}\right)$$

$$C = 16\Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^* \left(\frac{T_1}{T_2D_\xi^*|D_\xi|^2}\right); C^* = 16\Omega_1^{*2}\Omega_2\Omega_3 \left(\frac{T_1}{T_2D_\xi|D_\xi|^2}\right)$$

$$D = 8\Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^* \left(\frac{T_1}{T_2D_\xi^*|D_\xi|^2}\right); D^* = 8\Omega_1^{*2}\Omega_2\Omega_3 \left(\frac{T_1}{T_2D_\xi|D_\xi|^2}\right)$$

Se consideran los términos del denominador de la Ec.(3.68):

- El segundo y tercer término resaltan la dependencia de la diferencia de población respecto a la intensidad del haz de bombeo y del haz de prueba a través de $|\Omega_1|^2$ y $|\Omega_2|^2$, respectivamente.
 - El cuarto y quinto término representan la creación de la red de difracción a través del patrón de interferencia asociado a: $\Omega_1^2\Omega_2^*$ que actúa como fuente del campo E_3^* .
 - El sexto y séptimo término representan la creación de la red de difracción a través del patrón de interferencia asociado a: $\Omega_1^{*2}\Omega_2$ que actúa como fuente del campo E_3 .
- La figura (3.5) representa la variación espacial de la población en el sistema de dos niveles como resultado de la modulación espacial generada por la interferencia del haz de bombeo y prueba. En condiciones de equilibrio termodinámico se cumple que $\rho_D^{dc} = \rho^{eq} = 1$, el sistema se encuentra en el nivel fundamental, y el nivel de energía excitado se encuentra despopulado.

El patrón de interferencia generado por el haz de bombeo y de prueba forma una distribución espacial de energía, a ésta se le debe la variación espacial de la población [1, 8]. Mientras el valor de ρ_D^{dc} se encuentre más alejado de 1, más transiciones son inducidas al nivel superior. La interpretación de los máximos está asociada a las regiones en las que la interferencia ha sido destructiva y no se ha producido un aumento en la población del nivel superior y por el contrario la interpretación de los mínimos está asociada a las regiones en las que la interferencia ha sido constructiva y se ha producido un aumento en la población del estado superior causante de que

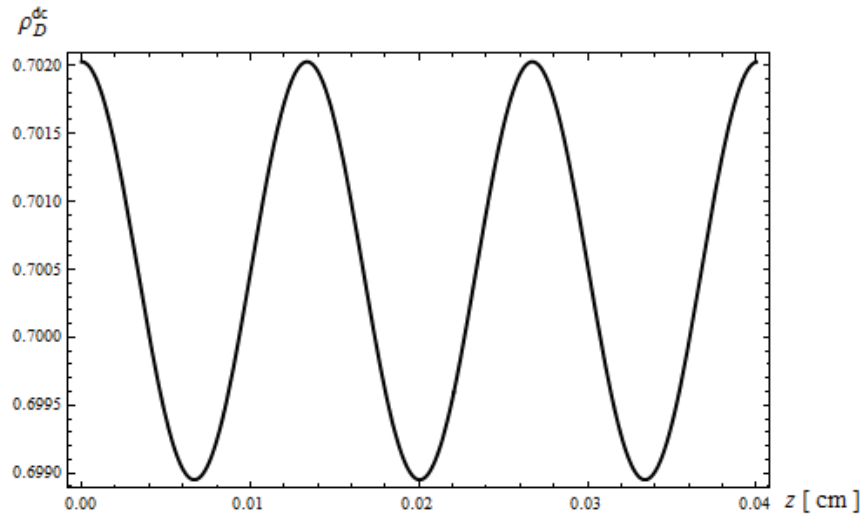


Figura 3.5: Variación espacial de la componente ρ_D^{dc} . Se muestra la variación espacial de la población en el sistema de dos niveles como resultado de la modulación espacial generada por la interferencia del haz de bombeo y prueba.

el sistema se aleje del equilibrio termodinámico [5, 8]. Las gráficas (3.2) y (3.5) se realizaron con el programa Mathematica, en el apéndice A se presentan los códigos usados.

Otros de los efectos que induce la presencia de la red poblacional son: la reducción en la absorción del haz de prueba una vez que el haz de bombeo se acopla con la red de oscilación, el bombeo logra despoblar el nivel fundamental induciendo transiciones al nivel superior. La modulación temporal de la transmisión y la amplitud del campo a través de la red de difracción [9-11]. Estos efectos conducen al desarrollo de dispositivos que permiten generar, modular y controlar la propagación de luz rápida y lenta a temperatura ambiente, con un gran impacto en el área de telecoluminaciones, procesamiento de información cuántica, imágenes ópticas, interferometría y sensores ópticos [41-45].

Capítulo 4

Aplicación del modelo al cálculo de propiedades ópticas

En el presente capítulo se desarrolla el cálculo de la polarización macroscópica asociada a cada uno de los campos de bombeo, prueba y señal. Se obtienen las susceptibilidades relacionadas a los diferentes procesos de coherencia, incoherencia y acoplamiento que tienen lugar en la interacción de los distintos haces dentro el sistema molecular. Se resaltan las diferencias entre en la respuesta del sistema molecular bajo el efecto del 1^{er} y 2^{do} orden en el haz de prueba. Al final del capítulo se expone una detallada descripción de la propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas a lo largo del sistema molecular.

4.1. Cálculo de la polarización macroscópica

En esta investigación se considera que la respuesta no lineal surge principalmente de la polarización electrónica que sufre el sistema molecular debido a su interacción con el campo. No se consideran contribuciones de las orientaciones moleculares y al fenómeno conocido como electrostricción, los cuales conducen a un cambio en la polarizabilidad de la molécula [1, 22].

Se consideran las ecuaciones (3.59), (3.61) y (3.63) y se las escribe explícitamente en términos de E_i y E_i^* donde $i = \{1, 2, 3\}$.

$$\rho_{ba}(\omega_1) = i \frac{\mu_{ba}}{\hbar} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} E_1 - a * \frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{f_{1,-2}}{J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} E_1 E_2 E_2^* - a * \frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{f_{3,-1} + f_{2,-1}}{J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} E_1^* E_2 E_3, \quad (4.1)$$

4.1. CÁLCULO DE LA POLARIZACIÓN MACROSCÓPICA

$$\begin{aligned} \rho_{ba}(\omega_2) = & a * \frac{4i\mu_{ab}^2\mu_{ba}^3}{\hbar^5} \frac{f_{1,-2}f_{1,-1}}{J^*J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_2} E_1 E_1 E_2 E_2^* E_3^* - \frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{f_{1,-3}}{J^*} \frac{\rho_D^{dc}}{D_2} E_1 E_1 E_3^* \\ & - \frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{f_{2,-1}}{J^*} \frac{\rho_D^{dc}}{D_2} E_1 E_1^* E_2 + i \frac{\mu_{ba}}{\hbar} \frac{\rho_D^{dc}}{D_2} E_2, \end{aligned} \quad (4.2)$$

$$\begin{aligned} \rho_{ba}(\omega_3) = & a * 4i \frac{\mu_{ab}^2\mu_{ba}^3}{\hbar^5} \frac{f_{2,-1}f_{1,-1}}{JJ^*} \frac{\rho_D^{dc}}{D_3} E_1 E_1^* E_2 E_2^* E_3 - 2i \frac{\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{f_{3,-1}}{J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_3} E_1 E_1^* E_3 \\ & - 2i \frac{\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{f_{1,-2}}{J} \frac{\rho_D^{dc}}{JD_3} E_1 E_1 E_2^* + i \frac{\mu_{ba}}{\hbar} \frac{\rho_D^{dc}}{D_3} E_3. \end{aligned} \quad (4.3)$$

Se considera que el haz de bombeo y el haz de prueba poseen la misma frecuencia, es decir: $\omega_1 \approx \omega_2$. Se conoce que $f_{n,-m} = \frac{2}{T_2|D_\xi|^2}$ con $n, m = \{1, 2, 3\}$, y $J = \frac{1}{T_1}$, de esta manera se calcula el promedio estadístico de las coherencias y poblaciones asociadas a la matriz de densidad.

$$\begin{aligned} \langle \rho_{ba}(\omega_1) \rangle_\xi = & i \frac{\mu_{ba}}{\hbar} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi} \right\rangle_\xi E_1 \\ & - a * \frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{2T_1}{T_2} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi|D_\xi|^2} \right\rangle_\xi E_1 E_2 E_2^* \\ & - a * \frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{4T_1}{T_2} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi|D_\xi|^2} \right\rangle_\xi E_1^* E_2 E_3, \end{aligned} \quad (4.4)$$

$$\begin{aligned} \langle \rho_{ba}(\omega_2) \rangle_\xi = & a * \frac{4i\mu_{ab}^2\mu_{ba}^3}{\hbar^5} \frac{4T_2^2}{T_2^2} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi|D_\xi|^4} \right\rangle_\xi E_1 E_1 E_2 E_2^* E_3^* \\ & - \frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{2T_1}{T_2} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi|D_\xi|^2} \right\rangle_\xi E_1 E_1 E_3^* \\ & - \frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{2T_1}{T_2} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi|D_\xi|^2} \right\rangle_\xi E_1 E_1^* E_2 + i \frac{\mu_{ba}}{\hbar} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi} \right\rangle_\xi E_2, \end{aligned} \quad (4.5)$$

$$\begin{aligned} \langle \rho_{ba}(\omega_3) \rangle_\xi = & a * 4i \frac{\mu_{ab}^2\mu_{ba}^3}{\hbar^5} \frac{4T_1^2}{T_2^2} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi|D_\xi|^4} \right\rangle_\xi E_1 E_1^* E_2 E_2^* E_3 \\ & - 2i \frac{\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{2T_1}{T_2} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi|D_\xi|^2} \right\rangle_\xi E_1 E_1^* E_3 \\ & - 2i \frac{\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{2T_1}{T_2} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi|D_\xi|^2} \right\rangle_\xi E_1 E_1 E_2^* + i \frac{\mu_{ba}}{\hbar} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_\xi} \right\rangle_\xi E_3. \end{aligned} \quad (4.6)$$

Los corchetes $\langle \dots \rangle_{\xi}$ indican el promedio estadístico en la variable estocástica ξ .

4.2. Polarización macroscópica

En lo que sigue se desarrolla el cálculo de la polarización macroscópica inducida por los campos en el sistema molecular. Se considera que:

$$P = N \langle \mu \rangle_{\theta} = N \text{Tr}(\rho \mu) \quad (4.7)$$

dado que los momentos dipolares permanentes de la molécula son nulos, solo se consideran los elementos no diagonales de la matriz de momento dipolar.

$$P(\omega_i) = N \langle (\langle \rho_{ab}(\omega_i) \rangle_{\xi} \mu_{ba} + \langle \rho_{ba}(\omega_i) \rangle_{\xi} \mu_{ab}) \rangle_{\theta}, \text{ con } i = \{1, 2, 3\},$$

$P(\omega_i)$ son las componentes de Fourier de la Polarización Macroscópica:

$$P(\omega_i) = N \langle (\langle \rho_{ba}(\omega_i) \rangle_{\xi} \mu_{ab}) \rangle_{\theta}, \quad (4.8)$$

los corchetes $\langle \dots \rangle_{\theta}$ indican el promedio estadístico en la dirección en la cual los dipolos eléctricos se orientan θ .

Polarización macroscópica para el haz de señal:

Se considera la ecuación (4.6) y es reemplazada en la ecuación (4.8), obteniendo

$$\begin{aligned} P(\omega_3) = & a * 4iN \frac{|\mu_{ba}|^6}{\hbar^5} \frac{4T_1^2 \rho_D^{dc}}{T_2^2 D_{\xi} |D_{\xi}|^4} E_1 E_1^* E_2 E_2^* E_3 - 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \frac{2T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} E_1 E_1^* E_3 \\ & - 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \frac{2T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} E_1 E_1 E_2^* + iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \frac{\rho_D^{dc}}{D_{\xi}} E_3, \end{aligned} \quad (4.9)$$

esta expresión es escrita de la siguiente manera

$$P(\omega_3) = (\chi_3^{(incoh)} + \chi_3^{(coh)}) E_3 + \chi_3^{(coup)} E_1 E_1 E_2^*, \quad (4.10)$$

cuyos coeficientes son:

$$\chi_3^{(incoh)} = iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_{\xi}} \right\rangle_{\xi}, \quad (4.11)$$

$$\chi_3^{(coh)} = 4iN \frac{|\mu_{ba}|^6 |E_1|^2 |E_2|^2}{\hbar^5} \left(\frac{4T_1^2}{T_2^2} \right) \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_{\xi} |D_{\xi}|^4} \right\rangle_{\xi} - 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4 |E_1|^2}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right\rangle_{\xi}, \quad (4.12)$$

$$\chi_3^{(coup)} = -2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \left\langle \frac{\rho_D^{dc}}{D_{\xi}|D_{\xi}|^2} \right\rangle_{\xi}. \quad (4.13)$$

La polarización macroscópica depende de la diferencia de poblaciones dada por la Ec. (3.65), a ésta última se la expresa a través de un desarrollo en series de Taylor, de tal forma que facilite los cálculos. Para colorantes orgánicos se cumple que: $X = \frac{4}{T_2^2|D_{\xi}|^2} S_{12} \ll 1$, y a través de un desarrollo en series de Taylor:

$$\begin{aligned} f(X) &= (1 + X)^{-1} \\ &= 1 - X + X^2 - X^3 + \dots \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n X^n, \end{aligned}$$

de esta manera la Ec. (3.65) se transforma en:

$$\rho_D^{dc} = \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \left(\frac{4}{T_2^2|D_{\xi}|^2} S_{12} \right)^n \rho_D^{eq}. \quad (4.14)$$

Reemplazando la Ec.(4.14) en las ecuaciones (3.11 - 3.13), se obtienen las susceptibilidades

$$\chi_3^{(incoh)} = \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi}|D_{\xi}|^{2n}} \right\rangle_{\xi}, \quad (4.15)$$

$$\begin{aligned} \chi_3^{(coh)} &= \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n 4iN \frac{|\mu_{ba}|^6 |E_1|^2 |E_2|^2}{\hbar^5} \left(\frac{4T_1}{T_2} \right) \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi}|D_{\xi}|^{2n+4}} \right\rangle_{\xi} \\ &\quad - \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4 |E_1|^2}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi}|D_{\xi}|^{2n+2}} \right\rangle_{\xi}, \end{aligned} \quad (4.16)$$

$$\chi_3^{(coup)} = - \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi}|D_{\xi}|^{2n+2}} \right\rangle_{\xi}, \quad (4.17)$$

de igual manera se encuentran las susceptibilidades coherentes, incoherentes y de acoplamiento para el haz de bombeo y de prueba a partir de la componente de Fourier de la polarización.

Polarización macroscópica para el haz de bombeo:

4.2. POLARIZACIÓN MACROSCÓPICA

Se considera la Ec. (4.4) y se en la Ec. (4.8), se obtiene

$$P(\omega_1) = iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \frac{\rho_D^{dc}}{D_{\xi}} E_1 - a * \frac{2iN |\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \frac{2T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} E_1 E_2 E_2^* - a * \frac{2iN |\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \frac{4T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} E_1^* E_2 E_3, \quad (4.18)$$

de manera similar:

$$P(\omega_1) = (\chi_1^{(incoh)} + \chi_1^{(coh)}) E_1 + \chi_1^{(coup)} E_1^* E_2 E_3, \quad (4.19)$$

con

$$\chi_1^{(incoh)} = \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2n}} \right\rangle_{\xi}, \quad (4.20)$$

$$\chi_1^{(coh)} = - \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4 |E_2|^2}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2n+2}} \right\rangle_{\xi}, \quad (4.21)$$

$$\chi_1^{(coup)} = - \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \left(\frac{4T_1}{T_2} \right) \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2n+2}} \right\rangle_{\xi}. \quad (4.22)$$

Polarización macroscópica para el haz de prueba:

Se considera la Ec. (4.5) y se en la Ec. (4.8), obteniendo

$$P(\omega_2) = a * \frac{4iN |\mu_{ba}|^6}{\hbar^5} \frac{4T_1^2 \rho_D^{dc}}{T_2^2 D_{\xi} |D_{\xi}|^4} E_1 E_1 E_2 E_2^* E_3^* - \frac{2iN |\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \frac{2T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} E_1 E_1 E_3^* - \frac{2iN |\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \frac{2T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} E_1 E_1^* E_2 + iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \frac{\rho_D^{dc}}{D_{\xi}} E_2, \quad (4.23)$$

puede ser escrita de la siguiente manera

$$P(\omega_2) = (\chi_2^{(incoh)} + \chi_2^{(coh)}) E_2 + \chi_2^{(coup)} E_1 E_1 E_3^*, \quad (4.24)$$

con

$$\chi_2^{(incoh)} = \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2n}} \right\rangle_{\xi}, \quad (4.25)$$

$$\chi_2^{(coh)} = - \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4 |E_1|^2}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2n+2}} \right\rangle_{\xi}, \quad (4.26)$$

$$\begin{aligned} \chi_2^{(coup)} &= \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n 4iN \frac{|\mu_{ba}|^6 |E_2|^2}{\hbar^5} \left(\frac{4T_1^2}{T_2^2} \right) \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2n+4}} \right\rangle_{\xi} \\ &\quad - \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n \rho_D^{eq} \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2n+2}} \right\rangle_{\xi}. \end{aligned} \quad (4.27)$$

Se definen los siguientes parámetros, para expresar a las susceptibilidades de las ecuaciones (4.9, 4.18, y 4.23) de forma compacta:

$$\begin{aligned} A(n) &= \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2n}}, \\ B(n) &= A(n+1) = \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2(n+1)}}, \\ C(n) &= B(n+1) = A(n+2) = \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2(n+2)}}, \\ \lambda(n) &= (-1)^n \left(\frac{4S_{12}}{T_2^2} \right)^n. \end{aligned}$$

Susceptibilidades asociadas al haz de señal - $E(\omega_3)$:

$$\chi_3^{(incoh)} = C_1 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n) \rangle_{\xi}, \quad (4.28)$$

$$\chi_3^{(coh)} = C_2 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n+2) \rangle_{\xi} + C_3 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n+1) \rangle_{\xi}, \quad (4.29)$$

$$\chi_3^{(coup)} = C_4 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n+1) \rangle_{\xi}, \quad (4.30)$$

donde:

$$\begin{aligned} C_1 &= iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \rho_D^{eq}, \quad C_2 = 4iN \frac{|\mu_{ba}|^6 |E_1|^2 |E_2|^2}{\hbar^5} \left(\frac{4T_1^2}{T_2^2} \right) \rho_D^{eq}, \\ C_3 &= -2iN \frac{|\mu_{ba}|^4 |E_1|^2}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \rho_D^{eq}, \quad y \quad C_4 = -2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \rho_D^{eq}. \end{aligned}$$

Susceptibilidades asociadas al haz de bombeo - $E(\omega_1)$:

$$\chi_1^{(incoh)} = C'_1 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n) \rangle_{\xi}, \quad (4.31)$$

$$\chi_1^{(coh)} = C'_2 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n+1) \rangle_{\xi}, \quad (4.32)$$

$$\chi_1^{(coup)} = C'_3 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n+1) \rangle_{\xi}, \quad (4.33)$$

donde:

$$C'_1 = iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \rho_D^{eq},$$

$$C'_2 = -2iN \frac{|\mu_{ba}|^4 |E_2|^2}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \rho_D^{eq}, \text{ y } C'_3 = -2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \left(\frac{4T_1}{T_2} \right) \rho_D^{eq}$$

Susceptibilidades asociadas al haz de prueba - $E(\omega_2)$:

$$\chi_2^{(incoh)} = C''_1 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n) \rangle_{\xi}, \quad (4.34)$$

$$\chi_2^{(coh)} = C''_2 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n+1) \rangle_{\xi}, \quad (4.35)$$

$$\chi_2^{(coup)} = C''_3 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n+1) \rangle_{\xi} + C''_4 \sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n+2) \rangle_{\xi} \quad (4.36)$$

donde:

$$C''_1 = iN \frac{|\mu_{ba}|^2}{\hbar} \rho_D^{eq}, \quad C''_2 = -2iN \frac{|\mu_{ba}|^4 |E_1|^2}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \rho_D^{eq}$$

$$C''_4 = 4iN \frac{|\mu_{ba}|^6 |E_2|^2}{\hbar^5} \left(\frac{4T_1^2}{T_2^2} \right) \rho_D^{eq}, \text{ y } C''_3 = -2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \left(\frac{2T_1}{T_2} \right) \rho_D^{eq}$$

El estudio de la convergencia de estas últimas series fue desarrollado por Colmenares y colaboradores [46], en el que se determina el término de convergencia cuando el error relativo entre dos términos consecutivos es menor al 1%, lo cual ocurre al ser alcanzado el sexto término de la serie. El cálculo de la polarización macroscópica conduce al siguiente conjunto de ecuaciones que describen la polarización que inducen los haces de bombeo, prueba y señal en el sistema molecular, respectivamente.

$$P(\omega_1) = (\chi_1^{(incoh)} + \chi_1^{(coh)}) E_1 + \chi_1^{(coup)} E_1^* E_2 E_3, \quad (4.37)$$

$$P(\omega_2) = (\chi_2^{(incoh)} + \chi_2^{(coh)}) E_2 + \chi_2^{(coup)} E_1 E_1 E_3^*, \quad (4.38)$$

$$P(\omega_3) = (\chi_3^{(incoh)} + \chi_3^{(coh)}) E_3 + \chi_3^{(coup)} E_1 E_1 E_2^*, \quad (4.39)$$

El primer término de las anteriores ecuaciones representa la respuesta lineal del sistema frente al campo electromagnético, y el segundo término representa la respuesta no lineal a tercer orden característico de un proceso de Mezcla de Cuatro Ondas, éste último término actúa como fuente de nuevos campos a distintas frecuencias que surgen como resultado de la aceleración de los electrones en presencia del campo electromagnético [1, 2, 5, 34]. Análogamente su interpretación está asociada a la difracción en la red de origen poblacional que sufren los haces de bombeo y prueba [1, 8].

4.3. Cálculo de la relación de recursividad

Las ecuaciones (4.28 - 4.36), poseen dependencia en el término $A(n)$, éste a su vez está relacionado con $A(n-1)$ y así sucesivamente. En esta sección se calcula la relación de recursividad, encontrando el primer término de la serie $A(0)$.

Se inicia el cálculo con:

$$\sum_{n=0}^{\infty} \lambda(n) \langle A(n) \rangle_{\xi}$$

donde:

$$\begin{aligned} \langle A(0) \rangle_{\xi} &= \left\langle \frac{1}{D_{\xi}} \right\rangle_{\xi}, \\ \langle A(1) \rangle_{\xi} &= \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right\rangle_{\xi}, \\ \langle A(2) \rangle_{\xi} &= \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^4} \right\rangle_{\xi}, \\ &\vdots \\ \langle A(n) \rangle_{\xi} &= \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^{2n}} \right\rangle_{\xi}. \end{aligned}$$

Al desarrollar el primer término $\langle A(0) \rangle_{\xi}$:

$$\langle A(0) \rangle_{\xi} = \left\langle \frac{1}{D_{\xi}} \right\rangle_{\xi} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{D_{\xi}} P(\xi) d\xi. \quad (4.40)$$

Se desarrolla el cálculo del promedio estadístico, $P(\xi)$ es la densidad de probabilidad Gaussiana dada por:

$$P(\xi) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} e^{-\frac{(\xi-\omega_0)^2}{2\gamma\tau}}. \quad (4.41)$$

El valor medio de la variable aleatoria es ω_0 , es decir $\langle \xi \rangle = \omega_0$, esto se debe a que en promedio los desplazamientos que sufre la frecuencia natural del sistema debido

4.3. CÁLCULO DE LA RELACIÓN DE RECURSIVIDAD

a las colisiones moleculares con el reservorio térmico son cero. La varianza es igual a $\gamma\tau$, o su equivalente $\sigma = \sqrt{\gamma\tau}$. σ representa el factor de acoplamiento entre el sistema molecular y el reservorio térmico, da razón de los efectos que induce la presencia del reservorio en las propiedades ópticas del sistema.

De esta manera se tiene

$$\langle A(0) \rangle_{\xi} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{D_{\xi}} \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} e^{-\frac{(\xi-\omega_0)^2}{2\gamma\tau}} d\xi,$$

reemplazando $D_{\xi} = \frac{1}{T_2} + i(\xi - \omega_{\xi})$ y multiplicando al numerador y denominador por $\frac{1}{T_2} - i(\xi - \omega_{\xi})$:

$$\langle A(0) \rangle_{\xi} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\frac{1}{T_2} - i(\xi - \omega_{\xi})}{\frac{1}{T_2^2} + (\xi - \omega_{\xi})^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} e^{-\frac{(\xi-\omega_0)^2}{2\gamma\tau}} d\xi,$$

Se define: $p = \xi - \omega_0$ y $\Delta_1 = \omega_{\xi} - \omega_0$, en parte real e imaginaria:

$$\langle A(0) \rangle_{\xi} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{T_2} \frac{1}{\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - p)^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} e^{-\frac{p^2}{2\gamma\tau}} dp + \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{i(\Delta_1 - p)}{\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - p)^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} e^{-\frac{p^2}{2\gamma\tau}} dp,$$

donde:

$$Re[\langle A(0) \rangle_{\xi}] = \frac{1}{T_2} \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - p)^2} e^{-\frac{p^2}{2\gamma\tau}} dp, \quad (4.42)$$

$$Im[\langle A(0) \rangle_{\xi}] = \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{(\Delta_1 - p)}{\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - p)^2} e^{-\frac{p^2}{2\gamma\tau}} dp. \quad (4.43)$$

Se desarrolla el cálculo de los dos siguientes términos para encontrar una relación entre ellos.

Desarrollando el segundo término $\langle A(1) \rangle_{\xi}$:

$$\langle A(1) \rangle_{\xi} = \left\langle \frac{1}{D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right\rangle_{\xi},$$

al reemplazar la expresión de: D_{ξ} y al multiplicar tanto el numerador como denominador por su complejo conjugado:

$$\langle A(1) \rangle_{\xi} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\frac{1}{T_2} - i(\xi - \omega_{\xi})}{[\frac{1}{T_2^2} + (\xi - \omega_{\xi})^2]^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} e^{-\frac{(\xi-\omega_0)^2}{2\gamma\tau}} d\xi,$$

4.3. CÁLCULO DE LA RELACIÓN DE RECURSIVIDAD

al separar en parte real e imaginaria,

$$\begin{aligned}\langle A(1) \rangle_{\xi} &= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{T_2} \frac{1}{[\frac{1}{T_2^2} + (\xi - \omega_{\xi})^2]^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} e^{-\frac{(\xi - \omega_0)^2}{2\gamma\tau}} d\xi \\ &+ \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{-i(\xi - \omega_{\xi})}{[\frac{1}{T_2^2} + (\xi - \omega_{\xi})^2]^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} e^{-\frac{(\xi - \omega_0)^2}{2\gamma\tau}} d\xi,\end{aligned}$$

usando el cambio de variable $p = \xi - \omega_0$ y $\Delta_1 = \omega_{\xi} - \omega_0$ e identificando parte real e imaginaria:

$$\begin{aligned}Re[\langle A(1) \rangle_{\xi}] &= \frac{1}{T_2\sqrt{2\pi\gamma\tau}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{[\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - p)^2]^2} e^{-\frac{p^2}{2\gamma\tau}} dp, \\ Im[\langle A(1) \rangle_{\xi}] &= \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{(\Delta_1 - p)}{[\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - p)^2]^2} e^{-\frac{p^2}{2\gamma\tau}} dp.\end{aligned}$$

Desarrollando el tercer término $\langle A(2) \rangle_{\xi}$: De igual manera se procede para el término $\langle A(2) \rangle_{\xi}$ para obtener:

$$\begin{aligned}Re[\langle A(2) \rangle_{\xi}] &= \frac{1}{T_2\sqrt{2\pi\gamma\tau}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{[\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - p)^2]^3} e^{-\frac{p^2}{2\gamma\tau}} dp, \\ Im[\langle A(2) \rangle_{\xi}] &= \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{(\Delta_1 - p)}{[\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - p)^2]^3} e^{-\frac{p^2}{2\gamma\tau}} dp.\end{aligned}$$

Se demuestra que entre $Re \langle A(0) \rangle_{\xi}$ y $Re \langle A(1) \rangle_{\xi}$ existe la siguiente relación:

$$\begin{aligned}Re[\langle A(1) \rangle_{\xi}] &= \frac{T_2^2}{2} Re[\langle A(0) \rangle_{\xi}] - \frac{T_2}{2} \frac{\partial}{\partial \left(\frac{1}{T_2}\right)} Re[\langle A(0) \rangle_{\xi}], \\ Im[\langle A(1) \rangle_{\xi}] &= -\frac{T_2}{2} \frac{\partial}{\partial \Delta_1} Re[\langle A(0) \rangle_{\xi}],\end{aligned}$$

de igual forma:

$$\begin{aligned}Re[\langle A(2) \rangle_{\xi}] &= \frac{T_2^2}{4} Re[\langle A(1) \rangle_{\xi}] - \frac{T_2}{4} \frac{\partial}{\partial \left(\frac{1}{T_2}\right)} Re[\langle A(1) \rangle_{\xi}], \\ Im[\langle A(2) \rangle_{\xi}] &= -\frac{T_2}{4} \frac{\partial}{\partial \Delta_1} Re[\langle A(1) \rangle_{\xi}],\end{aligned}$$

así se llega al siguiente par de fórmulas recursivas

$$Re[\langle A(n) \rangle_{\xi}] = \frac{T_2^2}{2n} Re[\langle A(n-1) \rangle_{\xi}] - \frac{T_2}{2n} \left[\frac{\partial}{\partial \left(\frac{1}{T_2} \right)} Re[\langle A(n-1) \rangle_{\xi}] \right], \quad (4.44)$$

$$Im[\langle A(n) \rangle_{\xi}] = -\frac{T_2}{2n} \left[\frac{\partial}{\partial \Delta_1} Re[\langle A(n-1) \rangle_{\xi}] \right]. \quad (4.45)$$

Las ecuaciones anteriores permiten el cálculo de los términos de la serie que aparece en la Ec. (4.14), una vez conocido el primer término $\langle A(0) \rangle$, dado por las ecuaciones (4.42) y (4.43) asociadas a su parte real e imaginaria, respectivamente. Se reconoce que las integrales pueden escribirse en forma de convoluciones:

$$Re[\langle A^{(0)} \rangle_{\xi}] = \frac{1}{T_2 \sqrt{2\pi\gamma\tau}} \theta_1 * \theta_2(\Delta_1) \quad (4.46)$$

$$Im[\langle A^{(0)} \rangle_{\xi}] = \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} \theta_3 * \theta_2(\Delta_1) \quad (4.47)$$

con:

$$\theta_1 = \frac{1}{\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - x)^2}, \quad \theta_2 = e^{-\frac{x^2}{2\pi\gamma\tau}}, \quad \theta_3 = \frac{(\Delta_1 - x)}{\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - x)^2},$$

en donde se ha usado el cambio de variable $x = p$.

Haciendo uso del teorema de convolución se encuentra el término $\langle A^{(0)} \rangle_{\xi}$, el apéndice B presenta el cálculo desarrollado por Paz y colaboradores [12].

$$Re[\langle A^{(0)} \rangle_{\xi}] = \frac{1}{\sqrt{\gamma\tau}} e^{\frac{T_2^{-2} - \Delta_1^2}{2\gamma\tau}} \cos\left(\frac{\Delta_1 T_2^{-1}}{\gamma\tau}\right), \quad (4.48)$$

$$Im[\langle A^{(0)} \rangle_{\xi}] = -\frac{1}{\sqrt{\gamma\tau}} e^{\frac{T_2^{-2} - \Delta_1^2}{2\gamma\tau}} \sin\left(\frac{\Delta_1 T_2^{-1}}{\gamma\tau}\right). \quad (4.49)$$

4.4. Efectos asociados al 2^{do} orden del haz de prueba

En la presente sección se remarcan las diferencias en la respuesta del sistema molecular asociadas al efecto del 2^{do} orden del haz de prueba respecto al 1^{er} orden. Se analizan los términos que se originan al considerar al haz de prueba como un haz no débil.

4.4.1. Análisis del 1^{er} orden del haz de prueba

Para estudiar las diferencias asociadas entre ambos órdenes en el haz de prueba se hallan las expresiones de mayor relevancia cuando el haz de prueba es considerado estrictamente débil, se analizan las componentes de Fourier asociadas a las coherencias y a la diferencia de población. Se consideran las ecuaciones (3.47), (3.48) y (3.51):

$$D_1^* \rho_{ab}(-\omega_1) = -i\rho_D^{dc} \Omega_1^* - a * i\rho_D(-\Delta) \Omega_2^* - a * i\rho_D(\Delta) \Omega_3^*,$$

$$D_1 \rho_{ba}(\omega_1) = i\Omega_1 \rho_D^{dc} + a * i\Omega_2 \rho_D(\Delta) + a * i\Omega_3 \rho_D(-\Delta),$$

$$\frac{\rho_D^{dc}}{T_1} - \frac{\rho_D^{eq}}{T_1} = -2i\Omega_1 \rho_{ab}(-\omega_1) - a * 2i\Omega_2 \rho_{ab}(-\omega_2) + 2i\Omega_1^*(\omega_1) \rho_{ba}(\omega_1) + a * 2i\Omega_2^* \rho_{ba}(\omega_2).$$

las cuales representan la oscilación de la población relativa del sistema molecular causada por el haz de bombeo y la oscilación de la diferencia de población en el equilibrio respectivamente. Cuando $a = 0$ se tienen las expresiones asociadas al 1^{er} orden del haz de prueba.

$$D_1^* \rho_{ab}(-\omega_1) = -i\rho_D^{dc} \Omega_1^*, \quad (4.50)$$

$$D_1 \rho_{ba}(\omega_1) = i\Omega_1 \rho_D^{dc}, \quad (4.51)$$

$$\frac{\rho_D^{dc}}{T_1} - \frac{\rho_D^{eq}}{T_1} = -2i\Omega_1 \rho_{ab}(-\omega_1) + 2i\Omega_1^*(\omega_1) \rho_{ba}(\omega_1). \quad (4.52)$$

las mismas que junto con las ecuaciones (3.43 - 3.46), (3.48) y (3.50) forman el sistema de ecuaciones acopladas para el caso en que el haz de prueba esta a 1^{er} orden. Una vez desacoplado este sistema se tiene:

$$\rho_{ba}(\omega_1) = i\Omega_1 \frac{\rho_D^{dc}}{D_1}, \quad (4.53)$$

$$\rho_{ba}(\omega_2) = -\frac{2i\Omega_1^2 \Omega_3^* f_{1,-3}}{J^* D_2} \rho_D^{dc} - \frac{2i|\Omega_1|^2 \Omega_2 f_{2,-1}}{J^* D_2} \rho_D^{dc} + i\Omega_2 \frac{\rho_D^{dc}}{D_2}, \quad (4.54)$$

$$\rho_{ba}(\omega_3) = \left(-\frac{2i|\Omega_1|^2 f_{3,-1}}{J} \right) \frac{\Omega_3}{D_3} \rho_D^{dc} - \frac{2i\Omega_1^2 \Omega_2^* f_{1,-2}}{J D_3} \rho_D^{dc} + i\Omega_3 \frac{\rho_D^{dc}}{D_3}, \quad (4.55)$$

$$\rho_D^{dc} = \frac{\rho_D^{eq}}{\left(1 + \frac{4}{T_2^2 |D_\xi|^2} S \right)}. \quad (4.56)$$

4.4. EFECTOS ASOCIADOS AL 2^{DO} ORDEN DEL HAZ DE PRUEBA

que corresponden a las ecuaciones (4.18), (4.23), y (4.9) cuando $a = 0$, conduciendo así a la polarización macroscópica asociada a los haces de bombeo, prueba y señal, respectivamente.

$$P(\omega_1) = iN \frac{|\mu_{ba}|^2 \rho_D^{dc}}{\hbar D_\zeta} E_1, \quad (4.57)$$

$$P(\omega_2) = i \frac{|\mu_{ba}|^2 \rho_D^{dc}}{\hbar D_\zeta} E_2 - \frac{2iN |\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \frac{2T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_\zeta |D_\zeta|^2} E_1 E_1 E_3^* - \frac{2iN |\mu_{ba}|^4 N}{\hbar^3} \frac{2T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_\zeta |D_\zeta|^2} E_1 E_1^* E_2, \quad (4.58)$$

$$P(\omega_3) = iN \frac{|\mu_{ba}|^2 \rho_D^{dc}}{\hbar D_\zeta} E_3 - 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \frac{2T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_\zeta |D_\zeta|^2} E_1 E_1^* E_3 - 2iN \frac{|\mu_{ba}|^4}{\hbar^3} \frac{2T_1 \rho_D^{dc}}{T_2 D_\zeta |D_\zeta|^2} E_1 E_1 E_2^*. \quad (4.59)$$

4.4.2. Nuevos términos generados por el efecto del 2^{do} orden

	Nuevo Término	Interpretación
$\rho_{ba}(\omega_1)$	$-\frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{f_{1,-2}}{J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} E_1 E_2 E_2^* - \frac{2i\mu_{ab}\mu_{ba}^2}{\hbar^3} \frac{f_{3,-1}+f_{2,-1}}{J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_1} E_1^* E_2 E_3$	Se generan procesos de coherencia y acoplamiento asociados a la interferencia y acoplamiento entre los haces de bombeo y prueba que dan origen a la red de difracción a través de la modulación espacial de las poblaciones.
$\rho_{ba}(\omega_2)$	$\frac{4i\mu_{ab}^2\mu_{ba}^3}{\hbar^5} \frac{f_{1,-2}f_{1,-1}}{J^*J} \frac{\rho_D^{dc}}{D_2} E_1 E_1 E_2 E_2^* E_3^*$	Se generan nuevos procesos de acoplamiento entre los haces de bombeo y prueba que inducen la dispersión del haz de bombeo generando fotones a la frecuencia ω_3 .
$\rho_{ba}(\omega_3)$	$4i \frac{\mu_{ab}^2\mu_{ba}^3}{\hbar^5} \frac{f_{2,-1}f_{1,-1}}{JJ^*} \frac{\rho_D^{dc}}{D_3} E_1 E_1^* E_2 E_2^* E_3$	Se generan procesos de coherencia asociados a la interferencia entre los haces de bombeo y prueba, que generan la modulación espacial de las poblaciones en el sistema de dos niveles.
ρ_D^{dc}	$-\frac{4}{T_2 D_\xi ^2} \Omega_2 ^2 \rho_D^{dc} + 32 \Omega_1 ^2 \Omega_2 ^2 \left(\frac{T_1}{T_2^2 D_\xi ^4} \right) \rho_D^{dc} + 16\Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* \left(\frac{T_1}{T_2 D_\xi^* D_\xi ^2} \right) \rho_D^{dc} + 8\Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* \left(\frac{T_1}{T_2 D_\xi D_\xi ^2} \right) \rho_D^{dc} + 16\Omega_1^{*2} \Omega_2 \Omega_3 \left(\frac{T_1}{T_2 D_\xi^* D_\xi ^2} \right) \rho_D^{dc} + 8\Omega_1^{*2} \Omega_2 \Omega_3 \left(\frac{T_1}{T_2 D_\xi D_\xi ^2} \right) \rho_D^{dc}$	El primer término está asociado a los efectos de saturación generados por el haz de prueba, el segundo término está asociado al acoplamiento entre los haces de bombeo y prueba, los siguientes cuatro términos están asociados con la generación de redes dinámicas que originan la modulación espacial de la población conduciendo a la difracción de los haces de bombeo y prueba.

Cuadro 4.1: Nuevos términos generados en las Coherencias - $\rho_{ba}(\omega_n)$ con $n= 1, 2, 3$ y en la diferencia de población en equilibrio - ρ_D^{dc}

Se analizan los términos que surgen por el efecto del segundo orden del haz de prueba, se los interpreta físicamente al asociarlos a procesos fotónicos que tienen lugar en el medio material. Se analizan los cambios en las componentes de Fourier asociadas a las coherencias y a la diferencia de población ya que permiten el cálculo

4.4. EFECTOS ASOCIADOS AL 2^{DO} ORDEN DEL HAZ DE PRUEBA

de la polarización macroscópica y el estudio de la propagación de la señal.

	Nuevo Término	Interpretación
$P(\omega_1)$	$-\frac{2iN \mu_{ba} ^4}{\hbar^3} \frac{2T_1\rho_D^{dc}}{T_2D_{\xi} D_{\xi} ^2} E_1E_2E_2^* - \frac{2iN \mu_{ba} ^4}{\hbar^3} \frac{4T_1\rho_D^{dc}}{T_2D_{\xi} D_{\xi} ^2} E_1^*E_2E_3$	Los procesos de coherencia y acoplamiento inducidos por la mayor intensidad del haz de prueba originan susceptibilidades asociadas a cada proceso respectivamente, generando un cambio significativo en las propiedades ópticas del sistema molecular.
$P(\omega_2)$	$\frac{4iN \mu_{ba} ^6}{\hbar^5} \frac{4T_1^2\rho_D^{dc}}{T_2^2D_{\xi} D_{\xi} ^4} E_1E_1E_2E_2^*E_3^*$	Los procesos de interferencia entre el haz de bombeo y prueba originan una contribución a la susceptibilidad de acoplamiento causando cambios en la propagación del haz de prueba a lo largo del camino óptico, además de contribuir a la polarización no lineal y actuar como fuentes de campos a nuevas frecuencias.
$P(\omega_3)$	$4iN \frac{ \mu_{ba} ^6}{\hbar^5} \frac{4T_1^2\rho_D^{dc}}{T_2^2D_{\xi} D_{\xi} ^4} E_1E_1^*E_2E_2^*E_3$	Se origina una contribución en la susceptibilidad de coherencia causando cambios en las propiedades ópticas del sistema molecular, afectando de manera directa al índice de refracción y al coeficiente de absorción.

Cuadro 4.2: Nuevos términos generados en la polarización macroscópica - $P(\omega_n)$ con $n= 1, 2, 3$.

Los nuevos términos en las coherencias y poblaciones conducen a contribuciones en la polarización macroscópica ligados a la respuesta no lineal del sistema.

4.5. Propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas

Esta sección pretende dar una detallada descripción de la propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas a lo largo del sistema molecular, analizando tres diferentes casos para los cuales se han considerado que la intensidad de la señal permanece constante, aproximadamente constante y variable. Se usa la ecuación de Maxwell para estudiar la propagación de la onda electromagnética.

4.5.1. Ecuaciones de amplitud acoplada

En el estudio de la propagación de ondas electromagnéticas se usa la polarización macroscópica inducida en el medio. Se utilizan las ecuaciones (4.37 - 4.39) que representan la polarización de cada uno de los campos de bombeo, prueba y señal. Se usa de la ecuación de propagación de ondas electromagnéticas, Ec.(2.19). Se llega a las ecuaciones de amplitud acoplada, nombradas así por que muestran el cambio de la amplitud de cada uno de los campos como consecuencia del acoplamiento con los otros dos campos [1, 2, 5].

$$\frac{d\tilde{E}_1}{dz} = -\frac{2\pi\omega_1}{\eta_1 c} \text{Im}(\chi_{eff1})\tilde{E}_1 + \frac{2\pi\omega_1 i}{\eta_1 c} \chi_1^{acop} \tilde{E}_1^* \tilde{E}_2 \tilde{E}_3 e^{i(-k_1+k_2+k_3-k_1)z}, \quad (4.60)$$

$$\frac{d\tilde{E}_2}{dz} = -\frac{2\pi\omega_2}{\eta_2 c} \text{Im}(\chi_{eff2})\tilde{E}_2 + \frac{2\pi\omega_2 i}{\eta_2 c} \chi_2^{acop} \tilde{E}_1^2 \tilde{E}_3^* e^{i(2k_1-k_3-k_2)z}, \quad (4.61)$$

$$\frac{d\tilde{E}_3}{dz} = -\frac{2\pi\omega_3}{\eta_3 c} \text{Im}(\chi_{eff3})\tilde{E}_3 + \frac{2\pi\omega_3 i}{\eta_3 c} \chi_3^{acop} \tilde{E}_1^2 \tilde{E}_2^* e^{i(2k_1-k_2-k_3)z}, \quad (4.62)$$

con $\chi_{effi} = \chi_i^{incoh} + \chi_i^{coh}$. Las expresiones anteriores se pueden escribir de manera compacta al considerar las siguientes definiciones:

$$\alpha_i = \frac{2\pi\omega_i i}{\eta_i c} \text{Im}(\chi_{effi}); \quad i = \{1, 2, 3\},$$

$$\Psi_1 = \frac{2\pi\omega_1 i}{\eta_1 c} \chi_1^{coup},$$

$$\Psi_i = \frac{2\pi\omega_i i}{\eta_i c} \tilde{E}_1^2 \chi_i^{coup}; \quad i = \{2, 3\},$$

$$\eta_i = \sqrt{1 + 4\pi(\text{Re}\chi^{SV} + \text{Re}\chi_{effi})}; \quad i = \{1, 2, 3\},$$

$$\Delta k = 2k_1 - k_2 - k_3,$$

de esta manera se llega a

$$\frac{d\tilde{E}_1}{dz} = -\alpha_1\tilde{E}_1 + \Psi_1\tilde{E}_1^*\tilde{E}_2\tilde{E}_3e^{i\Delta k \cdot z}, \quad (4.63)$$

$$\frac{d\tilde{E}_2}{dz} = -\alpha_2\tilde{E}_2 + \Psi_2\tilde{E}_3^*e^{i\Delta k \cdot z}, \quad (4.64)$$

$$\frac{d\tilde{E}_3}{dz} = -\alpha_3\tilde{E}_3 + \Psi_3\tilde{E}_2^*e^{i\Delta k \cdot z}. \quad (4.65)$$

El parámetro Δk conduce a grandes implicaciones en la atenuación que sufre el haz de señal al propagarse dentro del material, dando razón del desfase relativo entre los dipolos eléctricos que son inducidos en el material [1, 2].

Para analizar la propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas se desacopla el sistema de ecuaciones (4.63 - 4.65). Se toma la segunda derivada a la ecuación (4.65), y se reemplazan las ecuaciones (4.63) y (4.64) en esta última. Se considera $\Delta k = \Delta k(z)$.

De esta manera se obtiene $\alpha_i = \alpha_i(z)$ y $\Psi_i = \Psi_i(z)$.

$$\begin{aligned} \frac{d^2\tilde{E}_3}{dz^2} = & -\frac{d\alpha_3}{dz}\tilde{E}_3 - \frac{d\tilde{E}_3}{dz}\alpha_3 + \frac{d\Psi_3}{dz}\tilde{E}_2^*e^{i\Delta k \cdot z} \\ & + \Psi_3\frac{d\tilde{E}_2^*}{dz}e^{i\Delta k \cdot z} + \Psi_3\tilde{E}_2^*(i\Delta k)e^{i\Delta k \cdot z} + \Psi_3\tilde{E}_2^*(iz)\frac{d\Delta k}{dz}e^{i\Delta k \cdot z}, \end{aligned}$$

al reemplazar $\frac{d\tilde{E}_2^*}{dz}$ y al agrupar términos:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\tilde{E}_3}{dz^2} = & -\frac{d\alpha_3}{dz}\tilde{E}_3 - \frac{d\tilde{E}_3}{dz}\alpha_3 + \frac{d\Psi_3}{dz}\frac{1}{\Psi_3}\Psi_3\tilde{E}_2^*e^{i\Delta k \cdot z} \\ & + \Psi_3(-\alpha_2\tilde{E}_2^* + \Psi_2^*\tilde{E}_3e^{-i\Delta k \cdot z})e^{i\Delta k \cdot z} + \left(i\Delta ke^{i\Delta k \cdot z} + iz\frac{d\Delta k}{dz}e^{i\Delta k \cdot z}\right)\Psi_3\tilde{E}_2^*, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{d^2\tilde{E}_3}{dz^2} = & -\frac{d\alpha_3}{dz}\tilde{E}_3 - \frac{d\tilde{E}_3}{dz}\alpha_3 + \Psi_3\Psi_2^*\tilde{E}_3 \\ & + \left(\frac{d\ln\Psi_3}{dz} - \alpha_2 + i\Delta k + iz\frac{d\Delta k}{dz}\right)\Psi_3\tilde{E}_2^*e^{i\Delta k \cdot z}, \end{aligned}$$

finalmente se usa la ecuación (4.64),

$$\begin{aligned} \frac{d^2\tilde{E}_3}{dz^2} = & -\frac{d\alpha_3}{dz}\tilde{E}_3 - \frac{d\tilde{E}_3}{dz}\alpha_3 + \Psi_3\Psi_2^*\tilde{E}_3 \\ & + \left(\frac{d\ln\Psi_3}{dz} - \alpha_2 + i\Delta k + iz\frac{d\Delta k}{dz}\right)\left(\frac{d\tilde{E}_3}{dz} + \alpha_3\tilde{E}_3\right), \end{aligned}$$

al agrupar términos:

$$\frac{d^2 \tilde{E}_3}{dz^2} + \phi_1 \frac{d\tilde{E}_3}{dz} + \phi_2 \tilde{E}_3 = 0, \quad (4.66)$$

donde

$$\phi_1 = \alpha_3 + \alpha_2 - i \left(\Delta k + z \frac{d\Delta k}{dz} \right) - \frac{d \ln \Psi_3}{dz}, \quad (4.67)$$

$$\phi_2 = \frac{d\alpha_3}{dz} - \alpha_3 \frac{d \ln \Psi_3}{dz} + \alpha_3 \alpha_2 - \Psi_3 \Psi_2^* - i \alpha_3 \left(\Delta k + z \frac{d\Delta k}{dz} \right). \quad (4.68)$$

La atenuación del haz de señal depende implícitamente de la saturación que genera el haz de bombeo, a través de la siguiente expresión:

$$\begin{aligned} \tilde{E}_1^* \frac{d\tilde{E}_1}{dz} &= -\alpha_1 \tilde{E}_1 \tilde{E}_1^*, \\ \tilde{E}_1 \frac{d\tilde{E}_1^*}{dz} &= -\alpha_1 \tilde{E}_1 \tilde{E}_1^*, \end{aligned}$$

sumando ambas ecuaciones y considerando la regla de la derivada del producto de dos funciones:

$$\frac{d|\tilde{E}_1|^2}{dz} = -2\alpha_1 |\tilde{E}_1|^2, \quad (4.69)$$

usando la frecuencia de Rabi:

$$\Omega = \frac{\mu_{ab} \cdot E(t)}{\hbar},$$

y al multiplicar por su complejo conjugado se tiene

$$|\Omega|^2 = \frac{|\mu_{ab}|^2 |E(t)|^2}{\hbar^2},$$

se define el parámetro de saturación como: $S = |\Omega|^2 T_1 T_2$, que es introducido en la Ec. (4.69) y con sencilla manipulación algebraica se llega a:

$$\frac{dS_1}{dz} = -2\alpha_1 S_1. \quad (4.70)$$

4.5.2. 1^{er} Caso:

Intensidad constante a lo largo del camino óptico

En este primer caso la saturación del haz de bombeo no varía espacialmente, este hecho afecta de forma directa a los coeficientes de la Ec. (4.66), éstos dependen de manera implícita de la saturación generada por el haz de bombeo [12].

Expresando de manera explícita respecto a la saturación, las ecuaciones (4.67) y

(4.68) son dadas por:

$$\phi_1 = \alpha_3 + \alpha_2 - i \left(\Delta k + z \frac{d\Delta k}{dS} \frac{dS}{dz} \right) - \frac{d \ln \Psi_3}{dS} \frac{dS}{dz}, \quad (4.71)$$

$$\phi_2 = \frac{d\alpha_3}{dS} \frac{dS}{dz} - \alpha_3 \frac{d \ln \Psi_3}{dS} \frac{dS}{dz} + \alpha_3 \alpha_2 - \Psi_3 \Psi_2^* - i\alpha_3 \left(\Delta k + z \frac{d\Delta k}{dS} \frac{dS}{dz} \right). \quad (4.72)$$

Para este primer caso la saturación es constante a lo largo de la dirección de propagación y se cumple:

$$\frac{dS}{dz} = 0,$$

las expresiones anteriores se reducen a:

$$\phi_1^{(1)} = 2\alpha_3 - i\Delta k, \quad (4.73)$$

$$\phi_2^{(1)} = \alpha_3^2 - |\Psi_3|^2 - i\alpha_3 \Delta k, \quad (4.74)$$

con ello la Ec. (4.66) se transforma en una ecuación diferencial ordinaria de segundo orden de coeficientes constantes. Se considera una solución del tipo: $\tilde{E}_3 = e^{\lambda z}$, conduciendo a:

$$\lambda^2 + \phi_1^{(1)} \lambda + \phi_2^{(1)} = 0,$$

al resolver se tiene

$$\lambda = \frac{-\phi_1^{(1)} \pm \sqrt{\left(\phi_1^{(1)}\right)^2 - 4\phi_2^{(1)}}}{2},$$

al reemplazar $\phi_1^{(1)}$ y $\phi_2^{(1)}$ en la expresión anterior se llega a

$$\lambda = -\alpha_3 + \frac{i\Delta k}{2} \pm w,$$

donde $w = \sqrt{|\Psi_3|^2 - \frac{\Delta k^2}{4}}$.

La solución general tiene la siguiente forma:

$$\tilde{E}_3 = A e^{(-\alpha_3 + \frac{i\Delta k}{2} + w)z} + B e^{(-\alpha_3 + \frac{i\Delta k}{2} - w)z}, \quad (4.75)$$

se considera la condición inicial $\tilde{E}_3(0) = 0$ y se obtiene la relación entre los coeficientes A y B:

$$A = -B,$$

se considera la condición inicial $\tilde{E}_2^*(0) = \tilde{E}_{20}$ y se reemplaza la Ec. (4.75) en la Ec.

(4.66):

$$A = \frac{\Psi_3 \tilde{E}_{20}}{2w}.$$

De esta manera:

$$\tilde{E}_3 = \frac{\Psi_3 \tilde{E}_{20}}{w} e^{(-\alpha_3 + \frac{i\Delta k}{2})z} \left(\frac{e^{wz} - e^{-wz}}{2} \right),$$

$$\tilde{E}_3 = \frac{\Psi_3 \tilde{E}_{20}}{w} e^{(-\alpha_3 + \frac{i\Delta k}{2})z} \text{Sinh}(wz),$$

conduciendo a la expresión para la intensidad de la señal de mezcla de cuatro ondas

$$\frac{I_3}{I_{20}} = |\Psi_3|^2 e^{-2\alpha_3 z} \frac{\text{Sinh}^2(wz)}{(w)^2}. \quad (4.76)$$

4.5.3. 2^{do} Caso:

Intensidad quasivariable a lo largo del camino óptico

En este caso la saturación generada por el haz de bombeo varía lentamente a lo largo del camino óptico. Se cumple: $\frac{dS}{dz} \approx -2\alpha_1^{(S_0)} S_0$ [12], con lo cual las ecuaciones (4.67) y (4.68) se transforman en:

$$\phi_1^{(2)} = 2\alpha_3 - i\Delta k + 2\alpha_1^{(S_0)} S_0 \left(iz \frac{d\Delta k}{dS} + \frac{d \ln \Psi_3}{dS} \right), \quad (4.77)$$

$$\phi_2^{(2)} = \alpha_3^2 - |\Psi_3|^2 - i\Delta k \alpha_3 + 2\alpha_1^{(S_0)} S_0 \left(\alpha_3 \frac{d \ln \Psi_3}{dS} - \frac{d\alpha_3}{dS} + i\alpha_3 z \frac{d\Delta k}{dS} \right). \quad (4.78)$$

Al considerar que los coeficientes son aproximadamente constantes se resuelve la ecuación diferencial de manera similar al primer caso. Se obtiene una solución a coeficientes constantes. Se propone la siguiente solución: $\tilde{E}_3 = e^{\lambda z}$

$$\lambda^2 + \phi_1^{(2)} \lambda + \phi_2^{(2)} = 0,$$

con

$$\lambda = \frac{-\phi_1^{(2)} \pm \sqrt{(\phi_1^{(2)})^2 - 4\phi_2^{(2)}}}{2}.$$

Se desarrolla el término dentro de la raíz:

$$\begin{aligned} (\phi_1^{(2)})^2 - 4\phi_2^{(2)} = & \left[\left(2\alpha_3 + 2\alpha_1^{(S_0)} S_0 \frac{d \ln \Psi_3}{dS} \right) + i \left(2\alpha_1^{(S_0)} S_0 z \frac{d\Delta k}{dS} - \Delta k \right) \right]^2 \\ & - 4 \left[\alpha_3^2 - |\Psi_3|^2 - i\Delta k \alpha_3 + 2\alpha_1^{(S_0)} S_0 \left(\alpha_3 \frac{d \ln \Psi_3}{dS} - \frac{d\alpha_3}{dS} + i\alpha_3 z \frac{d\Delta k}{dS} \right) \right], \end{aligned}$$

4.5. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS

al desarrollar el cuadrado del primer término y despreciando términos que contengan producto de derivadas:

$$\left(\phi_1^{(2)}\right)^2 - 4\phi_2^{(2)} = 4\alpha_1^{(S_0)} S_0 z \Delta k \frac{d\Delta k}{dS} + 8\alpha_1^{(S_0)} S_0 \frac{d\alpha_3}{dS} - 4i\alpha_1^{(S_0)} S_0 \Delta k \frac{d\ln\Psi_3}{dS} - \Delta k^2 + 4|\Psi_3|^2,$$

de esta manera se tiene

$$\begin{aligned} w' &= \frac{\sqrt{\left(\phi_1^{(2)}\right)^2 - 4\phi_2^{(2)}}}{2} = \\ &= \frac{1}{2} \left[-\Delta k^2 + 4|\Psi_3|^2 + 2\alpha_1^{(S_0)} S_0 \left(2z\Delta k \frac{d\Delta k}{dS} + 4 \frac{d\alpha_3}{dS} - 2i\Delta k \frac{d\ln\Psi_3}{dS} \right) \right]^{\frac{1}{2}}, \end{aligned} \quad (4.79)$$

una vez hallada la expresión anterior se escribe la solución general de la Ec. (4.66) para el segundo caso:

$$\tilde{E}_3 = Ae^{\left(-\frac{\phi_1^{(2)}}{2} + \frac{\sqrt{\left(\phi_1^{(2)}\right)^2 - 4\phi_2^{(2)}}}{2} \right) z} + Be^{\left(-\frac{\phi_1^{(2)}}{2} - \frac{\sqrt{\left(\phi_1^{(2)}\right)^2 - 4\phi_2^{(2)}}}{2} \right) z}. \quad (4.80)$$

Se considera la condición inicial $\tilde{E}_3(0) = 0$ y se obtiene la relación entre los coeficientes A y B:

$$A = -B,$$

se considera la condición inicial $\tilde{E}_2^*(0) = \tilde{E}_{20}$ y se reemplaza la Ec. (4.80) en la Ec. (4.66) se obtiene:

$$A = \frac{\Psi_3 \tilde{E}_{20}}{2w'}.$$

De esta manera:

$$\tilde{E}_3 = \frac{\Psi_3 \tilde{E}_{20}}{2w'} e^{-\frac{\phi_1^{(2)}}{2} z} \left(e^{w'z} - e^{-w'z} \right).$$

Se reemplaza la expresión de ϕ_1 en la ecuación anterior, dando como resultado

$$\tilde{E}_3 = \frac{\Psi_3 \tilde{E}_{20}}{2w'} e^{\left[-\frac{\left(2\alpha_3 + 2\alpha_1^{(S_0)} S_0 \frac{d\ln\Psi_3}{dS} \right)}{2} z - i \frac{\left(2\alpha_1^{(S_0)} S_0 z \frac{d\Delta k}{dS} - \Delta k \right)}{2} z \right]} \left(e^{w'z} - e^{-w'z} \right), \quad (4.81)$$

multiplicando la ecuación anterior por su complejo conjugado se halla la intensidad del haz de señal para el segundo caso,

$$\frac{I_3}{I_{20}} = \frac{|\Psi_3|^2}{|w'|^2} e^{-\left(2\alpha_3 + \alpha_1^{(S_0)} S_0 \frac{d(\ln|\Psi_3|^2)}{dS} \right) z} \left[e^{(w'+w'^*)z} - e^{(w'-w'^*)z} - e^{-(w'-w'^*)z} + e^{-(w'+w'^*)z} \right]. \quad (4.82)$$

En lo que posterior se realiza el cálculo para escribir a w' de la siguiente manera:

$$w' = \text{Re}[w'] + i\text{Im}[w'],$$

partiendo de su expresión actual dada por:

$$w' = \frac{1}{2}\sqrt{w'_0} = \frac{1}{2}\sqrt{\text{Re}[w'_0] + i\text{Im}[w'_0]} \text{ con } w'_0 = \left(\phi_1^{(2)}\right)^2 - 4\phi_2^{(2)},$$

donde se considera que:

$$\frac{d\ln\Psi_3}{dS} = \frac{1}{\Psi_3} \frac{d\Psi_3}{dS},$$

aplicando sencilla manipulación algebraica,

$$\begin{aligned} \frac{1}{\Psi_3} \frac{d\Psi_3}{dS} &= \frac{\Psi_3^*}{|\Psi_3|^2} \left(\frac{d\text{Re}[\Psi_3]}{dS} + i \frac{d\text{Im}[\Psi_3]}{dS} \right) \\ &= \frac{i}{|\Psi_3|^2} \left(\text{Re}[\Psi_3] \frac{d\text{Im}[\Psi_3]}{dS} - \text{Im}[\Psi_3] \frac{d\text{Re}[\Psi_3]}{dS} \right) + \frac{1}{2|\Psi_3|^2} \left(\frac{d\text{Re}[\Psi_3]^2}{dS} + \frac{d\text{Im}[\Psi_3]^2}{dS} \right), \end{aligned} \quad (4.83)$$

se reemplaza esta última expresión en la Ec. (4.79), y se separa en parte real e imaginaria,

$$\begin{aligned} \text{Re}[w'_0] &= \left[-\Delta k^2 + 4|\Psi_3|^2 + 2\alpha_1^{(S_0)} S_0 \left(2z\Delta k \frac{d\Delta k}{dS} + 4 \frac{d\alpha_3}{dS} \right) \right] \\ &\quad + \frac{4\alpha_1^{(S_0)} S_0 \Delta k}{|\Psi_3|^2} \left(\text{Re}[\Psi_3] \frac{d\text{Im}[\Psi_3]}{dS} - \text{Im}[\Psi_3] \frac{d\text{Re}[\Psi_3]}{dS} \right), \\ \text{Im}[w'_0] &= -\frac{2\alpha_1^{(S_0)} S_0 \Delta k}{|\Psi_3|^2} \left(\frac{d\text{Re}[\Psi_3]^2}{dS} + \frac{d\text{Im}[\Psi_3]^2}{dS} \right). \end{aligned}$$

Cálculo de la parte real e imaginaria de w' .

La enésima raíz de un número complejo es otro número complejo tal que:

- Su módulo está dado por: $r' = \sqrt[n]{r}$
- Su argumento está dado por: $\theta' = \frac{\theta + 2\pi k}{n}$, $k = 0, 1, 2, (n-1)$

donde r , θ y n son respectivamente el módulo, argumento y la raíz del número complejo.

Se obtienen dos soluciones para el caso de la raíz cuadrada:

$$w' = \frac{1}{2} r' e^{i\theta'} = \begin{cases} \frac{1}{2} \sqrt[n]{r} e^{i\frac{\theta}{2}}, \\ \frac{1}{2} \sqrt[n]{r} e^{i\frac{\theta+2\pi}{2}}, \end{cases}$$

con:

$$r = \sqrt{\operatorname{Re}[w'_0]^2 + \operatorname{Im}[w'_0]^2}, \quad \theta = \operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right).$$

Obteniendo:

$$w' = \frac{1}{2} r' e^{i\theta'} = \begin{cases} \frac{1}{2} \sqrt{\sqrt{\operatorname{Re}[w'_0]^2 + \operatorname{Im}[w'_0]^2}} e^{i \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right)}{2} \right)}, \\ \frac{1}{2} \sqrt{\sqrt{\operatorname{Re}[w'_0]^2 + \operatorname{Im}[w'_0]^2}} e^{i \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right) + 2\pi}{2} \right)}, \end{cases}$$

$$w' = \begin{cases} \frac{1}{2} \{ \operatorname{Re}[w'_0]^2 + \operatorname{Im}[w'_0]^2 \}^{\frac{1}{4}} \left[\operatorname{Cos} \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right)}{2} \right) + i \operatorname{Sen} \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right)}{2} \right) \right], \\ \frac{1}{2} \{ \operatorname{Re}[w'_0]^2 + \operatorname{Im}[w'_0]^2 \}^{\frac{1}{4}} \left[\operatorname{Cos} \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right) + 2\pi}{2} \right) + i \operatorname{Sen} \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right) + 2\pi}{2} \right) \right], \end{cases}$$

de este modo se obtienen las dos raíces:

Primera raíz:

- $\operatorname{Re}[w'] = \frac{1}{2} \{ \operatorname{Re}[w'_0]^2 + \operatorname{Im}[w'_0]^2 \}^{\frac{1}{4}} \operatorname{Cos} \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right)}{2} \right),$
- $\operatorname{Im}[w'] = \frac{1}{2} \{ \operatorname{Re}[w'_0]^2 + \operatorname{Im}[w'_0]^2 \}^{\frac{1}{4}} \operatorname{Sen} \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right)}{2} \right).$

Segunda raíz:

- $\operatorname{Re}[w'] = -\frac{1}{2} \{ \operatorname{Re}[w'_0]^2 + \operatorname{Im}[w'_0]^2 \}^{\frac{1}{4}} \operatorname{Cos} \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right)}{2} \right),$
- $\operatorname{Im}[w'] = -\frac{1}{2} \{ \operatorname{Re}[w'_0]^2 + \operatorname{Im}[w'_0]^2 \}^{\frac{1}{4}} \operatorname{Sen} \left(\frac{\operatorname{arctag} \left(\frac{\operatorname{Im}[w'_0]}{\operatorname{Re}[w'_0]} \right)}{2} \right).$

Se cumplen las siguientes relaciones para ambas raíces:

$$w' + w'^* = 2\operatorname{Re}[w'],$$

$$w' - w'^* = 2i\operatorname{Im}[w'].$$

La Ec. (4.82) se escribe de la siguiente manera:

$$\frac{I_3}{I_{20}} = \frac{|\Psi_3|^2}{4|w'|^2} e^{-\left(2\alpha_3 + \alpha_1^{(S_0)} S_0 \frac{d(\ln|\Psi_3|^2)}{dS}\right)z} \left[e^{2\text{Re}[w']z} + e^{-2\text{Re}[w']z} - e^{2i\text{Im}[w']z} - e^{-2i\text{Im}[w']z} \right],$$

al usar relaciones trigonométricas se expresa la ecuación en la siguiente manera:

$$\frac{I_3}{I_{20}} = 4|\Psi_3|^2 e^{-\left(2\alpha_3 + \alpha_1^{(S_0)} S_0 \frac{d(\ln|\Psi_3|^2)}{dS}\right)z} \left[\frac{\text{Sinh}^2(\text{Re}[w']z)}{(\text{Re}[w']^2 + \text{Im}[w']^2)} + \frac{\text{Sin}^2(\text{Im}[w']z)}{(\text{Re}[w']^2 + \text{Im}[w']^2)} \right]. \quad (4.84)$$

4.5.4. 3^{ero} Caso:

Intensidad variable a lo largo del camino óptico

Finalmente, se analiza el tercer caso de propagación en el cual la variación de la intensidad del haz de bombeo a través del camino óptico es significativa. La variación de la saturación del haz de bombeo respecto al camino óptico está dada por: $\frac{dS}{dz} = -2\Theta S_0 e^{\left[(-2\Theta z + \frac{4S_0}{b})S_0\right]}$, donde $\Theta = \frac{2\pi\omega_1\mu_{ab}^2\rho_D^{dc}T_2}{\hbar\eta_{1c}}$ y $b = 1 + \Delta_1^2 T_2^2$ [12], los coeficientes de la Ec. (4.66) se transforman en:

$$\phi_1^{(3)} = 2\alpha_3 - i\Delta k + 2\Theta S_0 e^{\left[(-2\Theta z + \frac{4S_0}{b})S_0\right]} \left(iz \frac{d\Delta k}{dS} + \frac{d\ln\Psi_3}{dS} \right), \quad (4.85)$$

$$\phi_2^{(3)} = \alpha_3^2 - |\Psi_3|^2 - i\Delta k\alpha_3 + 2\Theta S_0 e^{\left[(-2\Theta z + \frac{4S_0}{b})S_0\right]} \left(\alpha_3 \frac{d\ln\Psi_3}{dS} - \frac{d\alpha_3}{dS} + i\alpha_3 z \frac{d\Delta k}{dS} \right). \quad (4.86)$$

usando la Ec. (4.83) para expresar $\frac{d\ln\Psi_3}{dS}$ en su parte real e imaginaria se tiene:

$$\begin{aligned} \phi_1^{(3)} = & 2\alpha_3 - i\Delta k \\ & + 2\Theta S_0 e^{\left[(-2\Theta z + \frac{4S_0}{b})S_0\right]} \left[iz \frac{d\Delta k}{dS} + \frac{i}{|\Psi_3|^2} \left(\text{Re}[\Psi_3] \frac{d\text{Im}[\Psi_3]}{dS} - \text{Im}[\Psi_3] \frac{d\text{Re}[\Psi_3]}{dS} \right) \right. \\ & \left. + \frac{1}{2|\Psi_3|^2} \left(\frac{d\text{Re}[\Psi_3]^2}{dS} + \frac{d\text{Im}[\Psi_3]^2}{dS} \right) \right], \end{aligned} \quad (4.87)$$

$$\begin{aligned}
 \phi_2^{(3)} = & \alpha_3^2 - |\Psi_3|^2 - i\Delta k\alpha_3 \\
 & + 2\Theta S_0 e^{[-2\Theta z + \frac{4S_0}{b}]S_0} \left[\frac{i\alpha_3}{|\Psi_3|^2} \left(\operatorname{Re}[\Psi_3] \frac{d\operatorname{Im}[\Psi_3]}{dS} - \operatorname{Im}[\Psi_3] \frac{d\operatorname{Re}[\Psi_3]}{dS} \right) \right. \\
 & \left. + i\alpha_3 z \frac{d\Delta k}{dS} + \frac{\alpha_3}{2|\Psi_3|^2} \left(\frac{d\operatorname{Re}[\Psi_3]^2}{dS} + \frac{d\operatorname{Im}[\Psi_3]^2}{dS} \right) - \frac{d\alpha_3}{dS} \right].
 \end{aligned} \tag{4.88}$$

Se aplican métodos numéricos para la resolución de la siguiente ecuación diferencial con coeficientes variables:

$$\frac{d^2 \tilde{E}_3}{dz^2} + \phi_1^{(3)} \frac{d\tilde{E}_3}{dz} + \phi_2^{(3)} \tilde{E}_3 = 0, \tag{4.89}$$

Capítulo 5

Resultados y discusión

Este capítulo está destinado a la discusión de los resultados obtenidos. En una primera parte se analizan los perfiles de absorción y dispersión. Se estudian los cambios en las propiedades ópticas que surgen como efecto de la variación del tiempo de relajación transversal, de las distintas relaciones entre los tiempos de relajación longitudinal y transversal, de la concentración molecular, del factor de acoplamiento entre el sistema molecular y del baño térmico, y de la saturación generada por el haz de bombeo. La segunda parte se centra en analizar tres casos de propagación y el efecto que tienen los parámetros moleculares sobre éstas.

Para efecto de las simulaciones se han considerado los siguientes parámetros moleculares característicos del colorante orgánico cloruro verde de malaquita [12-14]:

Símbolo	Magnitud Física	Valor
T_1, T_2	Tiempos de relajación	1.1×10^{-12} [s]
ω_0	Frecuencia natural del sistema	3.06×10^{15} [s ⁻¹]
μ_{ab}	Momentos dipolares inducidos	2.81×10^{-18} [erg ^{-1/2} cm ^{3/2}]

Cuadro 5.1: Parámetros moleculares del cloruro verde de malaquita

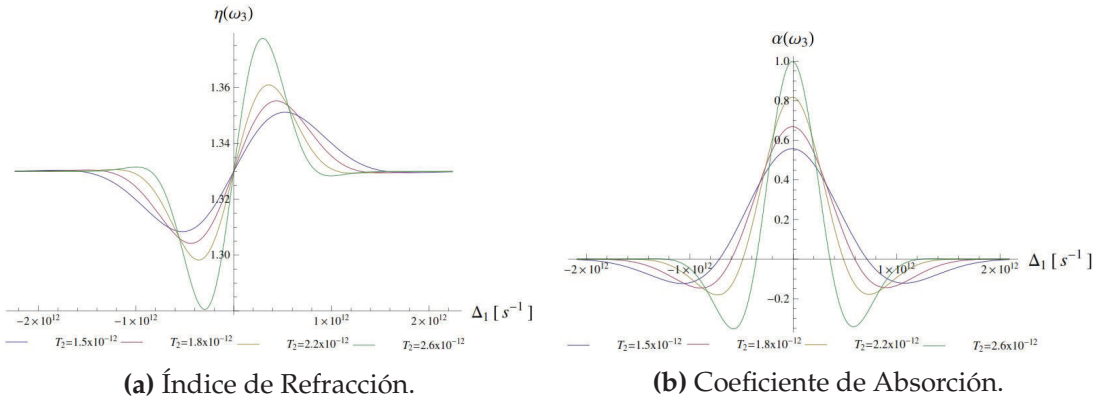


Figura 5.1: Efecto del tiempo de relajación transversal - T_2 (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores del tiempo de relajación transversal T_2 .

5.1. Propiedades Ópticas - Perfiles 2D

En esta sección se presentan las gráficas de las propiedades ópticas (índice de refracción y coeficiente de absorción) asociadas al haz de señal en función de los diferentes parámetros moleculares del sistema. Se han graficado los perfiles de dispersión y absorción respecto al factor de sintonización para distintos parámetros moleculares. A continuación se describe cada una de las gráficas presentadas.

En general se observa que cuando el factor de sintonización es igual a cero el valor del índice de refracción coincide con el del solvente (agua, $\eta = 1,33$). Se observa que el pico de absorción se estrecha conforme el factor de sintonización tiende a cero, como se esperaría. Esto se discute abajo en mayor detalle.

Las figuras 5.1 (a) y (b) muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores del tiempo de relajación transversal T_2 , considerando fijos los parámetros moleculares: $\sigma = T_1^{-1}$, $S = 0,1$, $N = 1\mu M$ y $T_1 = T_2$. El índice de refracción muestra un desplazamiento hacia al eje vertical de sus máximos y mínimos conforme el tiempo de relajación transversal aumenta, además muestra un alejamiento respecto al índice de refracción del solvente (1.33). El coeficiente de absorción muestra que mientras mayor sea el tiempo de relajación transversal más estrecho es el pico de absorción. El efecto de las propiedades ópticas serán mayores mientras mayor sea el tiempo que tarda el sistema en perder la coherencia de los dipolos eléctricos inducidos (T_2).

Las figuras 5.2 (a) y (b) muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintas relaciones entre los tiempos de

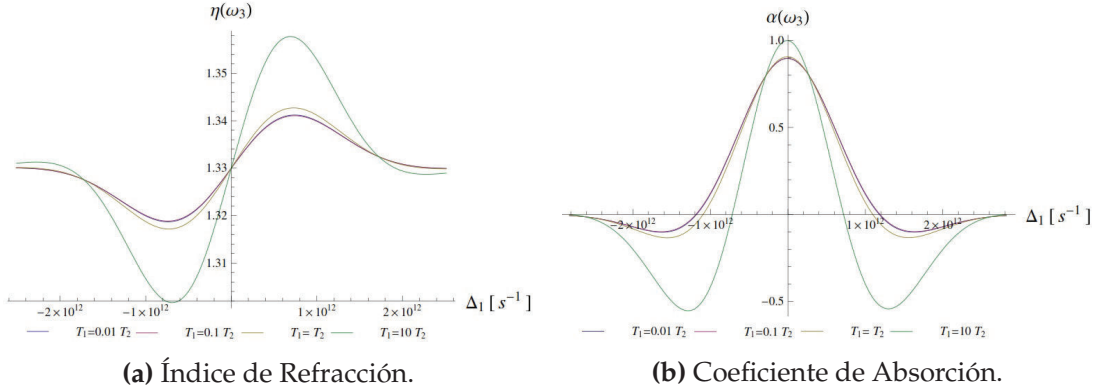


Figura 5.2: Efecto de las relaciones entre los tiempos de relajación: T_1 y T_2 (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintas relaciones entre los tiempos de relajación transversal T_2 y longitudinal T_1 .

relajación transversal T_2 y longitudinal T_1 , considerando fijos los parámetros moleculares: $T_2 = 1,1 \times 10^{-12}$, $\sigma = T_1^{-1}$, $S = 0,1$, y $N = 1 \mu M$. En la mayoría de sistemas moleculares se encuentra que $T_1 \gg T_2$. Basado en el hecho que el tiempo que tarda el sistema en volver al equilibrio termodinámico una vez el estímulo del campo electromagnético ha cesado es mucho mayor al tiempo en el que el desfase de los dipolos inducidos es tal que la polarización macroscópica es nula [1, 7]. El efecto de las propiedades ópticas serán mayores mientras mayor sea la relación $\frac{T_1}{T_2}$.

Las figuras 5.3 (a) y (b) muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores del factor de acoplamiento entre el sistema molecular y el reservorio térmico σ , considerando fijos los parámetros moleculares: $T_2 = 1,1 \times 10^{-12}$, $S = 0,1$, $N = 1 \mu M$ y $T_1 = T_2$. Mientras mayor sea el efecto del factor de acoplamiento en el sistema molecular mayor serán las interacciones entre el sistema y el reservorio. Habrá un mayor número de colisiones moleculares entre los componentes de ambos subsistemas, que ocasionarán que el sistema alcance el equilibrio más rápido. Mientras mayor sea el factor de acoplamiento menor será el efecto de la propiedad óptica, lo cual tiene perfecta concordancia con la figura (5.1), la cual muestra que a menor valor del tiempo de relajación transversal (el sistema pierda la coherencia más rápido) el efecto de las propiedades ópticas es menor.

Las figuras 5.4 (a) y (b) muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores de la concentración molecular N , considerando fijos los parámetros moleculares: $T_2 = 1,1 \times 10^{-12}$, $\sigma = T_1^{-1}$, $S = 0,1$

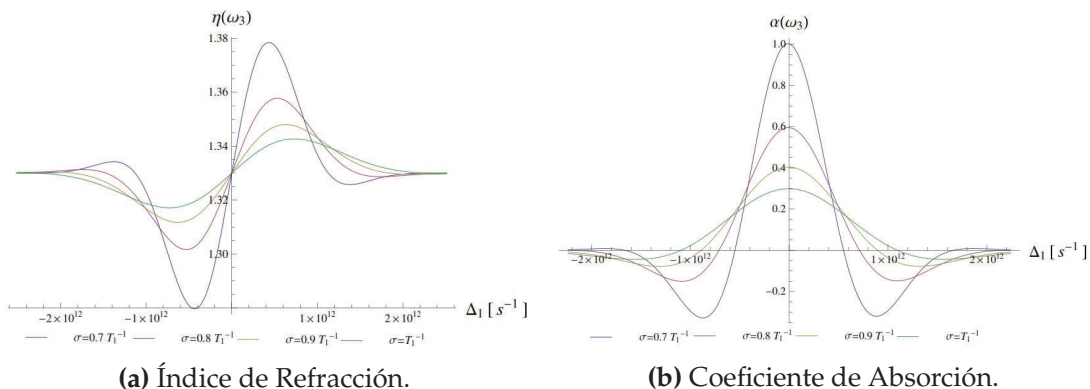


Figura 5.3: Efecto del factor de acoplamiento entre el sistema molecular y el reservorio térmico: σ (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores del factor de acoplamiento entre el sistema molecular y el reservorio térmico σ .

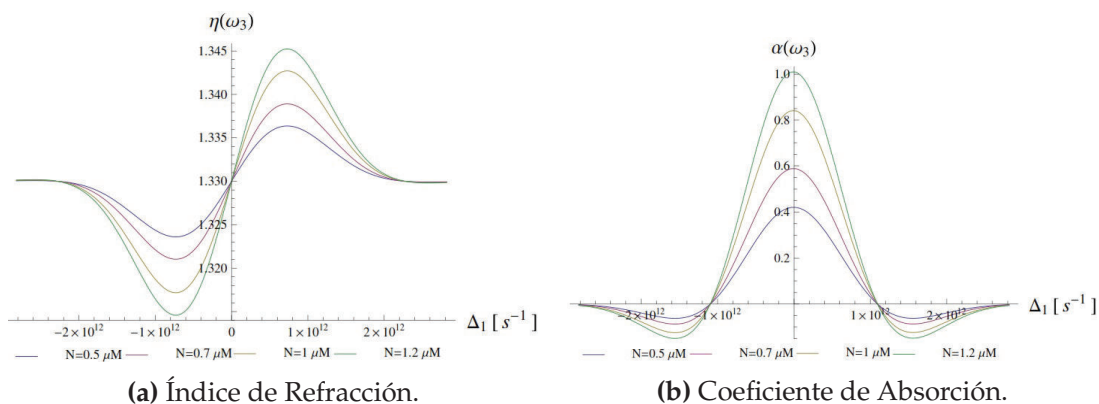


Figura 5.4: Efecto de la Concentración Molecular - N (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores de la concentración molecular N .

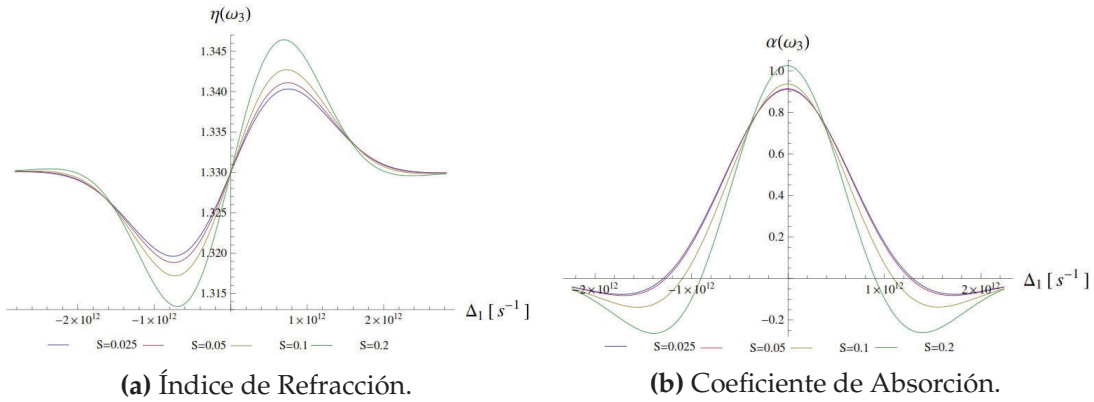


Figura 5.5: Efecto de la Saturación - S (2D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores de saturación S .

y $T_1 = T_2$. Mientras mayor sea la concentración molecular mayor es el efecto de la propiedad óptica, indicando que existe una alta dispersión y absorción conforme mayor sea el número de moléculas con el cuál el haz de bombeo interactúa.

Las figuras 5.5 (a) y (b) muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 para distintos valores de saturación S , considerando fijos los parámetros moleculares: $T_2 = 1,1 \times 10^{-12}$, $\sigma = T_1^{-1}$, $N = 1 \mu M$ y $T_1 = T_2$. Mientras mayor sea la saturación inducida por el haz de bombeo mayor es el efecto de la propiedad óptica. Conforme la saturación generada por el bombeo sea mayor, la absorción del haz de prueba y señal deberá ser menor, ya que el nivel fundamental del sistema molecular se encuentra despoblado y la energía de los haces de prueba y señal no puede ser absorbida por el sistema, esperando así una mayor transmisión.

5.2. Propiedades Ópticas - Perfiles 3D

Las figuras 5.6 - 5.8 muestran los perfiles de dispersión y absorción en tres dimensiones para distintos valores de tiempo de relajación transversal, concentración molecular y saturación, respectivamente. El comportamiento de las propiedades ópticas revela un aumento en el efecto que producen sobre el sistema molecular conforme mayor sean los parámetros moleculares, concordando con lo analizado en los perfiles de dos dimensiones.

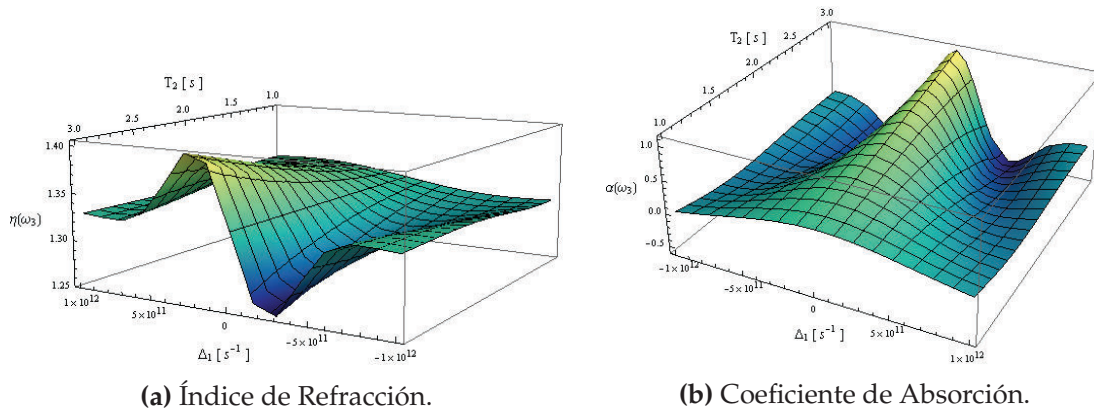


Figura 5.6: Efecto del Tiempo de Relajación Transversal - T_2 (3D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 y del tiempo de relajación transversal T_2 .

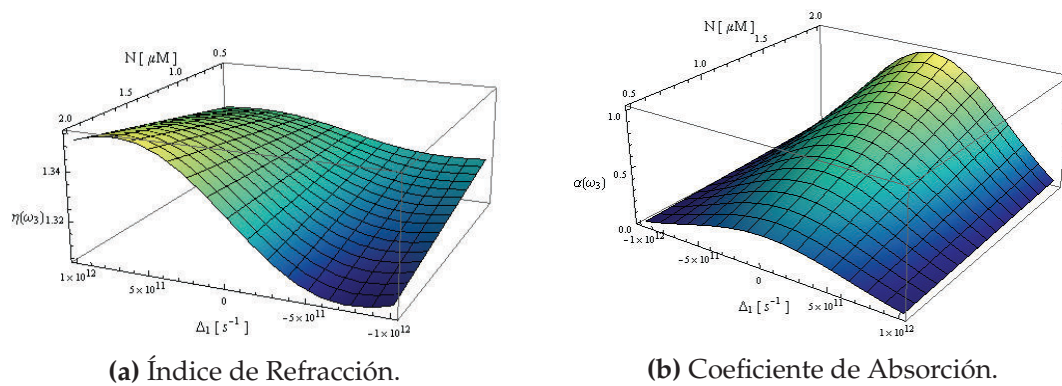


Figura 5.7: Efecto de la Concentración Molecular - N (3D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 y de la concentración molecular N .

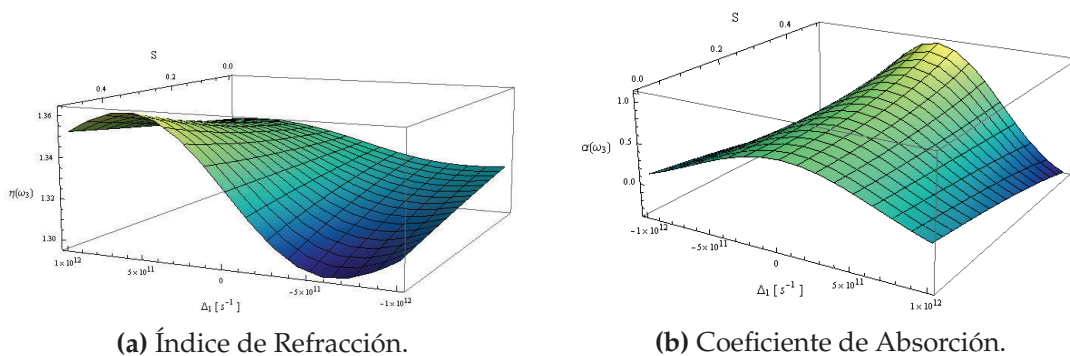


Figura 5.8: Efecto de la Saturación - S (3D), se muestran los perfiles de dispersión y absorción en función del factor de sintonización Δ_1 y de la saturación S .

5.3. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS - 1^{ER} CASO

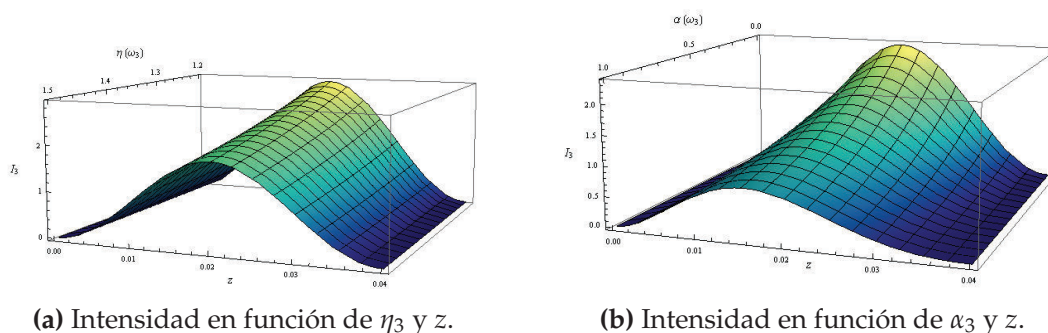


Figura 5.9: Variación de la intensidad respecto a las propiedades ópticas: $\eta(\omega_3)$ y $\alpha(\omega_3)$ - 1^{er} Caso. Se muestra la variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico y respecto a las propiedades ópticas de dispersión y absorción, respectivamente.

5.3. Propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas - 1^{er} Caso

La variación de la intensidad del haz de bombeo se considera constante a lo largo del camino óptico. Se han considerado los siguientes parámetros moleculares para la propagación del haz de señal: $0 \leq z \leq 0,04$ [cm], $T_2 = 1,1 \times 10^{-12}$, $\sigma = T_1^{-1}$, $S = 0,1$, $N = 1 \mu M$ y $T_1 = T_2$.

5.3.1. Perfiles de atenuación - 3D

En las figuras 5.9 (a) y (b) se muestra la variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico y respecto a las propiedades ópticas de dispersión $\eta(\omega_3)$ y absorción $\alpha(\omega_3)$, respectivamente. Mientras mayor es el efecto de la propiedad óptica mayor es la atenuación de la intensidad. La interpretación física es la siguiente: mientras mayor sea la dispersión y la absorción que sufre el haz de señal menor será su intensidad, bajo éstas condiciones el haz de señal cede más energía al sistema. Mientras menores sean los efectos de las propiedades ópticas, menores serán los procesos de dispersión y absorción que sufra el haz, consecuentemente la intensidad del haz de señal no se ve fuertemente afectada. Para este primer caso de atenuación se evidencia un desplazamiento del máximo de intensidad, debido a que los procesos de dispersión que tienen lugar en la muestra producen que el punto de enfoque se desplace.

Las figuras 5.10 (a) y (b) muestran la variación de la intensidad del haz de señal

5.3. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS - 1^{ER} CASO

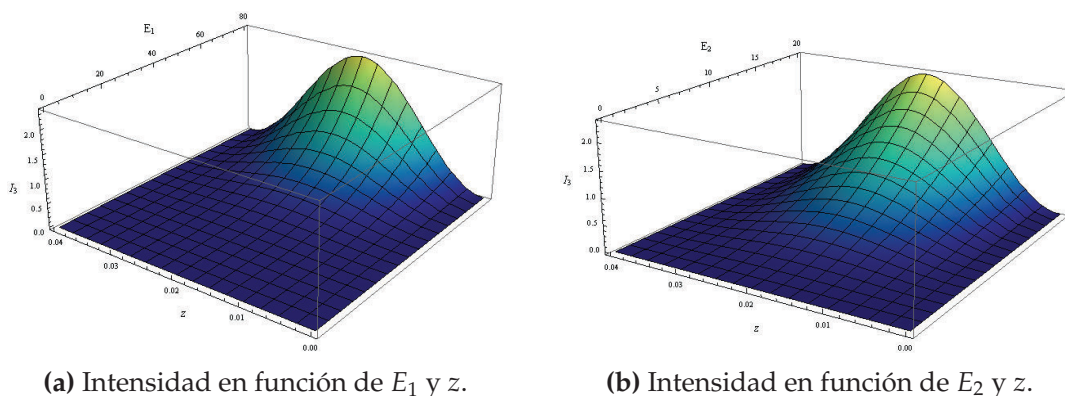


Figura 5.10: Variación de la intensidad respecto a los campos de bombeo E_1 y prueba E_2 - 1^{er} Caso. Se observa que la intensidad del haz de señal se comporta de manera no lineal frente al haz de bombeo y de forma lineal frente al haz de prueba.

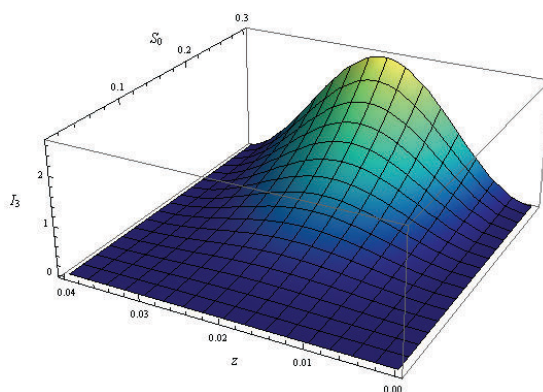


Figura 5.11: Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la saturación del haz de bombeo - 1^{er} Caso. Mientras mayor es el efecto de la saturación del haz de bombeo mayor es la intensidad del haz de señal.

respecto a la longitud de camino óptico y respecto a la amplitud del haz de bombeo y de prueba, respectivamente. Se observa que la intensidad del haz de señal se comporta de manera no lineal frente al haz de bombeo y de forma lineal frente al haz de prueba, lo cual está asociado a la consideración de que el haz de bombeo es considerado a todos los órdenes y el haz de prueba hasta el segundo orden.

La figura 5.11 muestra la variación de la intensidad del haz de señal frente a la longitud del camino óptico y a la saturación del haz de bombeo. Mientras mayor es el efecto de la saturación del haz de bombeo mayor es la intensidad del haz de señal. La interpretación física yace en que a mayor saturación el nivel fundamental del sistema molecular se encuentra despoblado y por lo tanto la intensidad del haz de señal podrá ser transmitido con la menor pérdida. Mientras menor sea la saturación, el nivel fundamental estará altamente poblado conduciendo a una alta absorción del

5.4. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS - 2^{DO} CASO

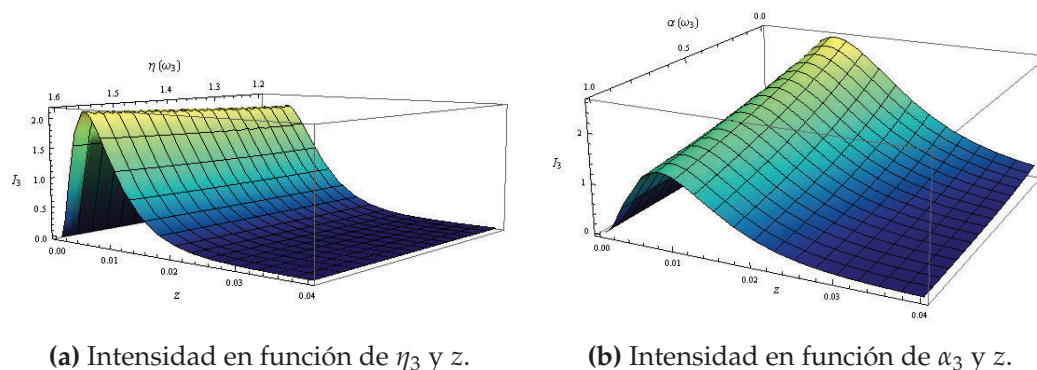


Figura 5.12: Variación de la intensidad respecto a las propiedades ópticas: $\eta(\omega_3)$ y $\alpha(\omega_3)$ - 2^{do} Caso. Al igual que en el primer caso de propagación se observa que mientras mayor es el efecto de la propiedad óptica mayor es la atenuación que sufre la intensidad del haz.

haz de señal y con ello a la atenuación de su intensidad.

5.4. Propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas - 2^{do} Caso

La variación de la intensidad del haz de bombeo se considera levemente variable a lo largo del camino óptico. Se han considerado los siguientes parámetros moleculares para la propagación del haz de señal: $0 \leq z \leq 0,04$ [cm], $T_2 = 1,1 \times 10^{-12}$, $\sigma = T_1^{-1}$, $S = 0,1$, $N = 1 \mu M$ y $T_1 = T_2$.

5.4.1. Perfiles de atenuación - 3D

En las figuras 5.12 (a) y (b) se muestra la variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico y respecto a las propiedades ópticas de dispersión $\eta(\omega_3)$ y absorción $\alpha(\omega_3)$, respectivamente. Al igual que en el primer caso de propagación se observa que mientras mayor es el efecto de la propiedad óptica mayor es la atenuación de la intensidad. De igual manera se evidencia el desplazamiento del máximo de intensidad debido al corrimiento del punto de enfoque del haz.

Las figuras 5.13 (a) y (b) muestran la variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico y respecto a la amplitud del haz de bombeo y de prueba, respectivamente. La intensidad del haz de señal se comporta de manera

5.4. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS - 2^{DO} CASO

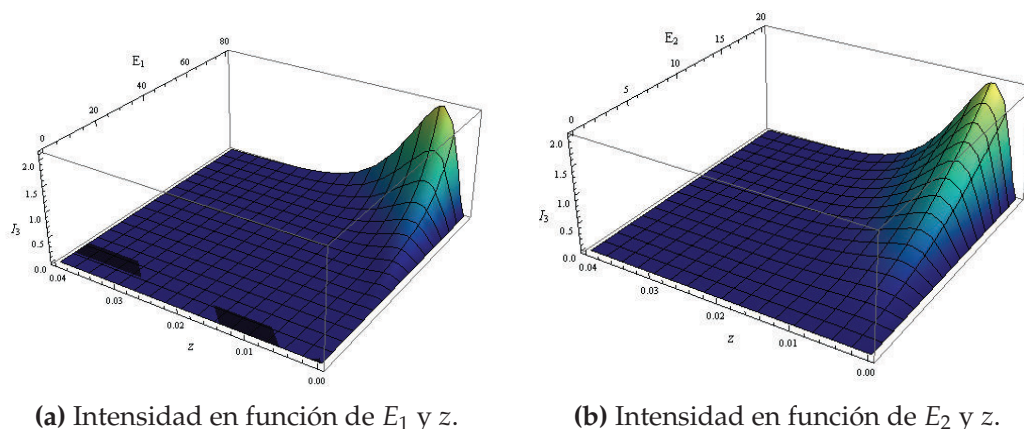


Figura 5.13: Variación de la intensidad respecto a los campos de bombeo E_1 y prueba E_2 - 2^{do} Caso. La intensidad del haz de señal se comporta de manera no lineal frente al haz de bombeo y por el contrario de forma lineal frente al haz de prueba.

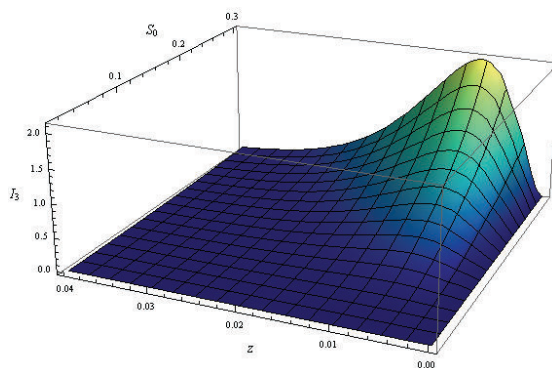


Figura 5.14: Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la saturación - 2^{do} Caso. Mientras mayor es el efecto de la saturación del haz de bombeo mayor es la intensidad del haz de señal.

no lineal frente al haz de bombeo y por el contrario de forma lineal frente al haz de prueba, lo cual está asociado a la consideración de que el haz de bombeo es considerado a todos los órdenes y el haz de prueba hasta el segundo orden.

La figura 5.14 muestra la variación de la intensidad del haz de señal frente a la longitud del camino óptico y a la saturación del haz de bombeo. Mientras mayor es el efecto de la saturación del haz de bombeo mayor es la intensidad del haz de señal. La interpretación física es la misma al del primer caso de propagación.

5.5. Propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas - 3^{er} Caso

En esta última sección del análisis de resultados se presenta la propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas para el caso en que la variación de la intensidad del haz de bombeo es considerable, por tal razón se ha recurrido al uso de métodos numéricos implementados a través del programa Mathematica.

Se han considerado los siguientes parámetros moleculares para la propagación del haz de señal: $0 \leq z \leq 0,04$ [cm], $T_2 = 1,1 \times 10^{-12}$, $\sigma = T_1^{-1}$, $S = 0,1$, $N = 1 \mu M$ y $T_1 = T_2$.

Las figuras 5.15 (a-e), 5.16 (a-e), 5.17 (a-e) muestran los perfiles de intensidad del haz de señal para cada uno de los tres casos de propagación considerando distintos valores del parámetro de saturación y concentración molecular, las líneas punteadas representan la tolerancia de $\pm 10\%$ que se ha fijado para analizar la validez de los dos primeros casos frente al tercero. Los tres casos de propagación han sido identificados como: p, q y r, respectivamente.

En las figura 5.15 (a-e) se toma fijo el valor de la saturación ($S=0,05$) y se varía el valor de la concentración molecular entre los siguientes valores ($N=\{0,01, 0,1, 0,5, 1, 10\}$), se observa una tendencia de disminución de la intensidad del haz de señal conforme aumenta el valor de la concentración molecular. La gráfica 5.15 (d) es la excepción para esta tendencia.

5.5. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS - 3^{ER} CASO

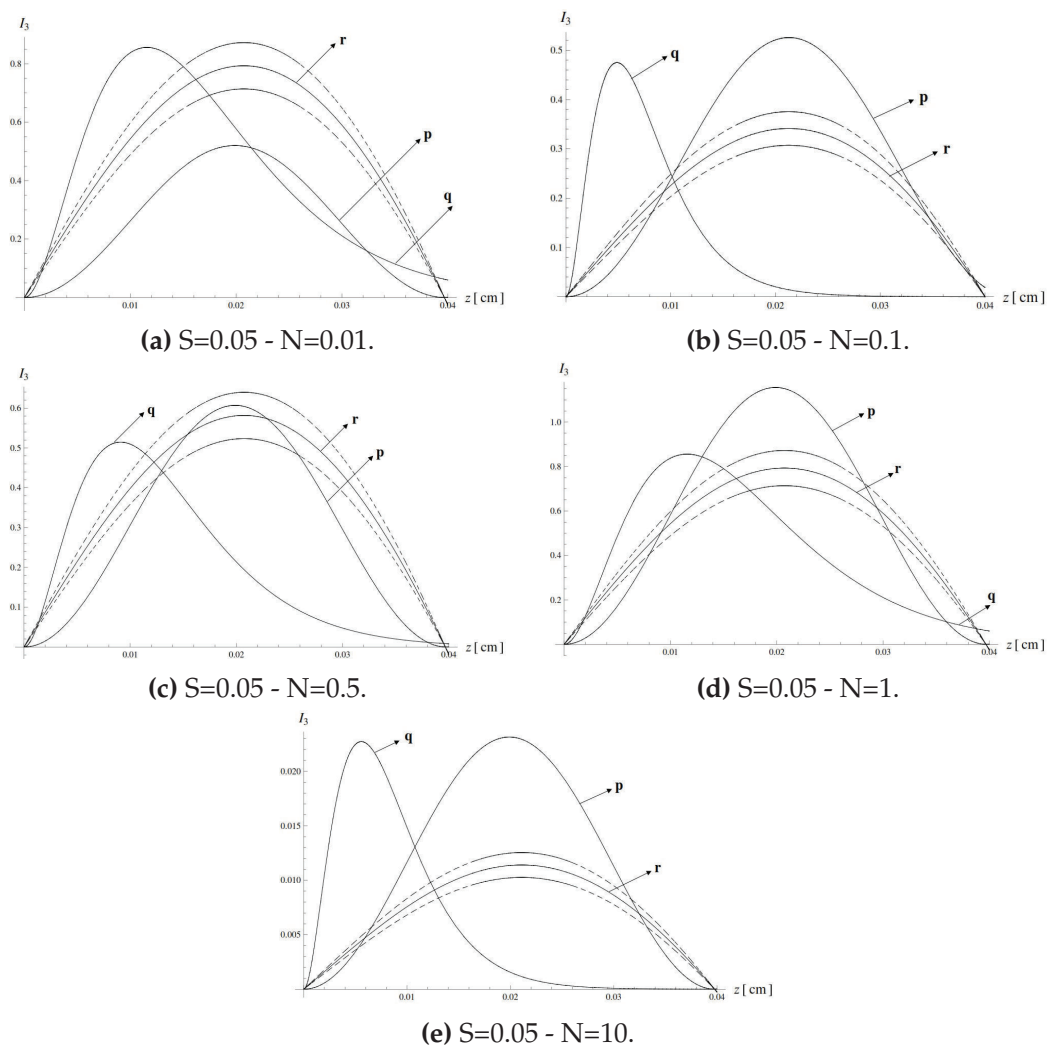


Figura 5.15: Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico para los tres casos de propagación considerando un valor de saturación fijo ($S=0.05$) y distintos valores de concentración molecular. Las líneas punteadas representan la tolerancia de $\pm 10\%$ bajo la cual se analiza la validez de los dos primeros casos frente al tercero. ($p \rightarrow 1^{er}$ Caso, $q \rightarrow 2^{do}$ Caso, $r \rightarrow 3^{er}$ Caso).

En las figura 5.16 (a-e) se toma fijo el valor de la saturación ($S=0.1$) y se varía el valor de la concentración molecular entre los siguientes valores ($N=\{0.01, 0.1, 0.5, 1, 10\}$), se repite la tendencia presentada en el caso anterior. Disminuye la intensidad del haz de señal conforme aumenta el valor de la concentración molecular.

En las figura 5.17 (a-e) se toma fijo el valor de la saturación ($S=0.4$) y se varía el valor de la concentración molecular entre los siguientes valores ($N=\{0.01, 0.1, 0.5, 1, 10\}$), se repite la tendencia presentada de los casos anteriores. Disminuye la intensidad del haz de señal conforme aumenta el valor de la concentración molecular. La gráfica 5.17 (d) es la excepción para esta tendencia.

5.5. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS - 3^{ER} CASO

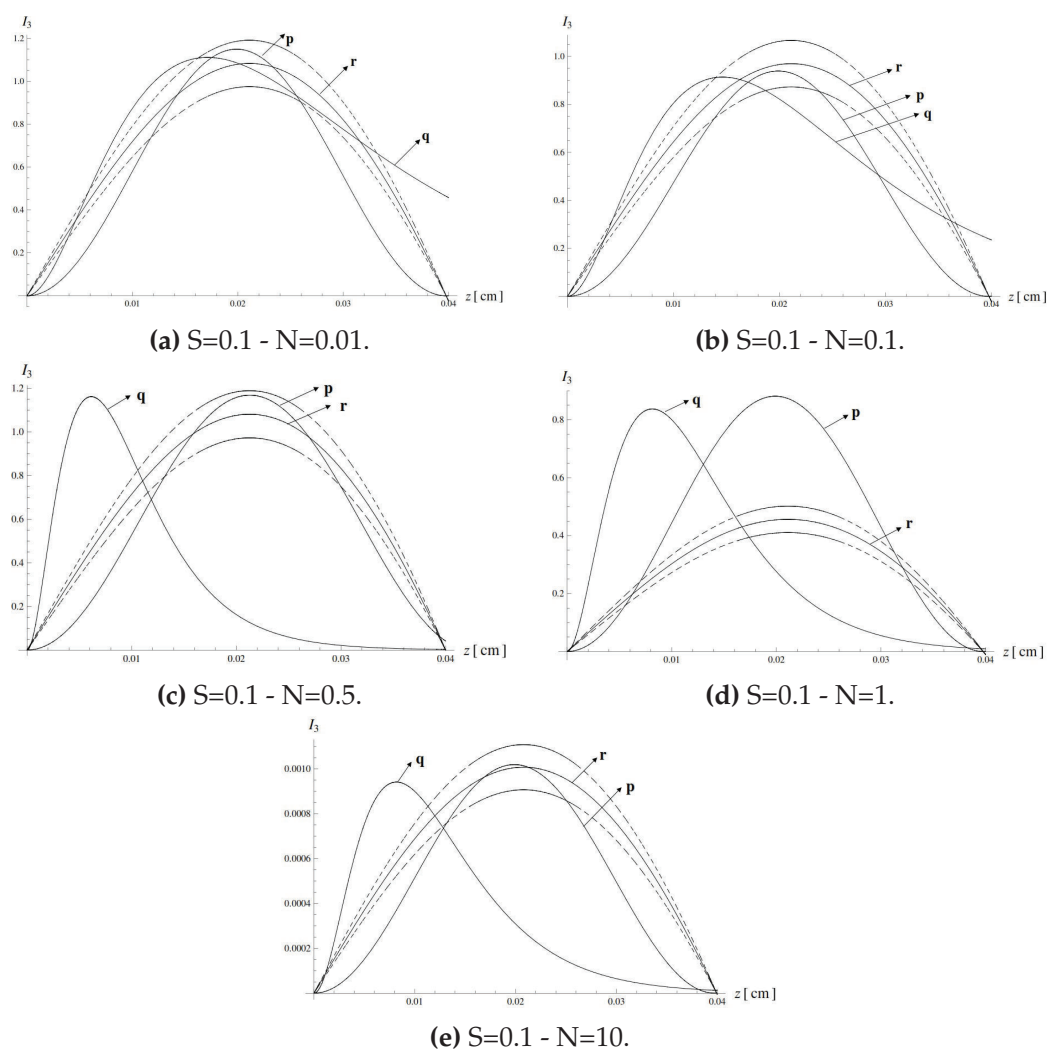


Figura 5.16: Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico para los tres casos de propagación considerando un valor de saturación fijo ($S=0.1$) y distintos valores de concentración molecular, las líneas punteadas representan la tolerancia de $\pm 10\%$ bajo la cual se analiza la validez de los dos primeros casos frente al tercero. ($p \rightarrow 1^{er}$ Caso, $q \rightarrow 2^{do}$ Caso, $r \rightarrow 3^{er}$ Caso).

5.5. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS - 3^{ER} CASO

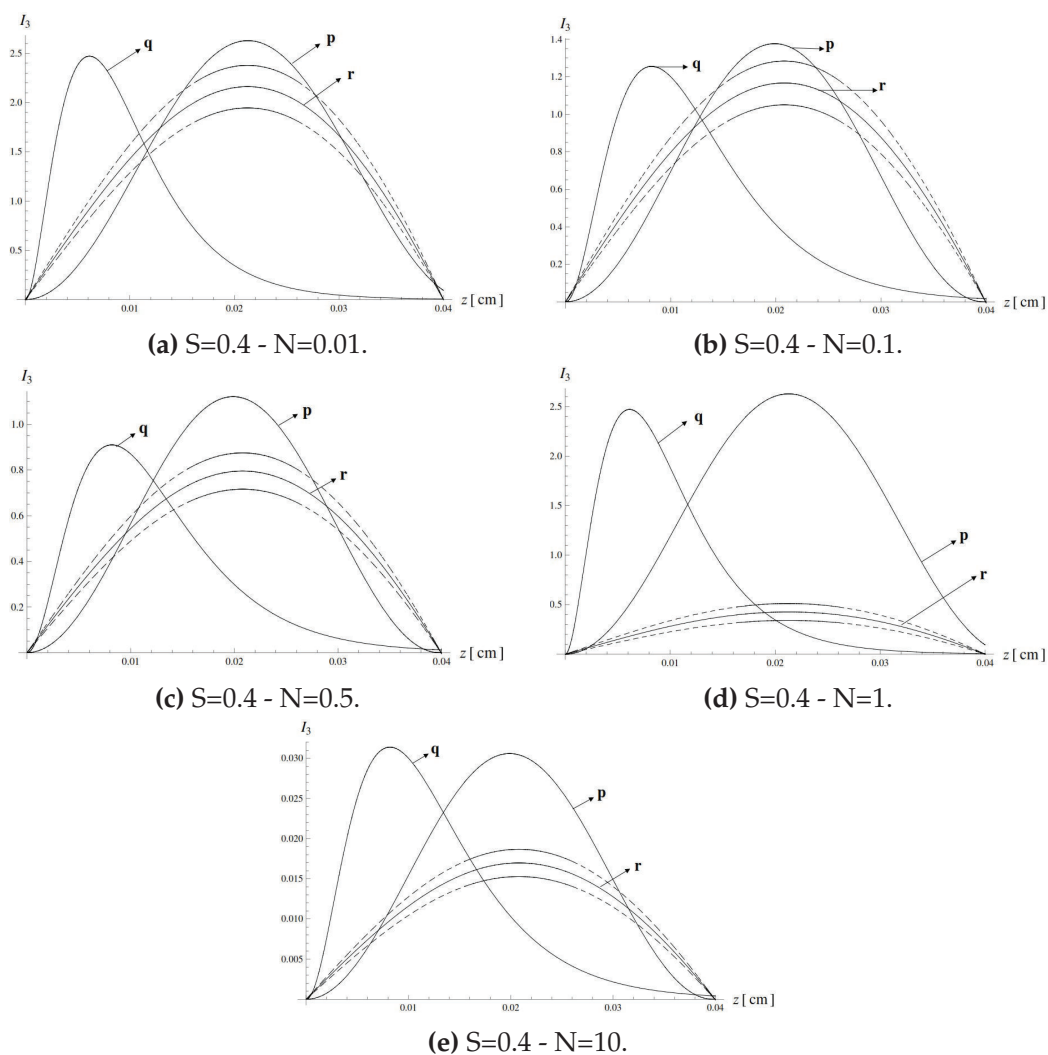


Figura 5.17: Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico para los tres casos de propagación considerando un valor de saturación fijo ($S=0.4$) y distintos valores de concentración molecular, las líneas punteadas representan la tolerancia de $\pm 10\%$ bajo la cual se analiza la validez de los dos primeros casos frente al tercero. ($p \rightarrow 1^{er}$ Caso, $q \rightarrow 2^{do}$ Caso, $r \rightarrow 3^{er}$ Caso).

5.5. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS - 3^{ER} CASO

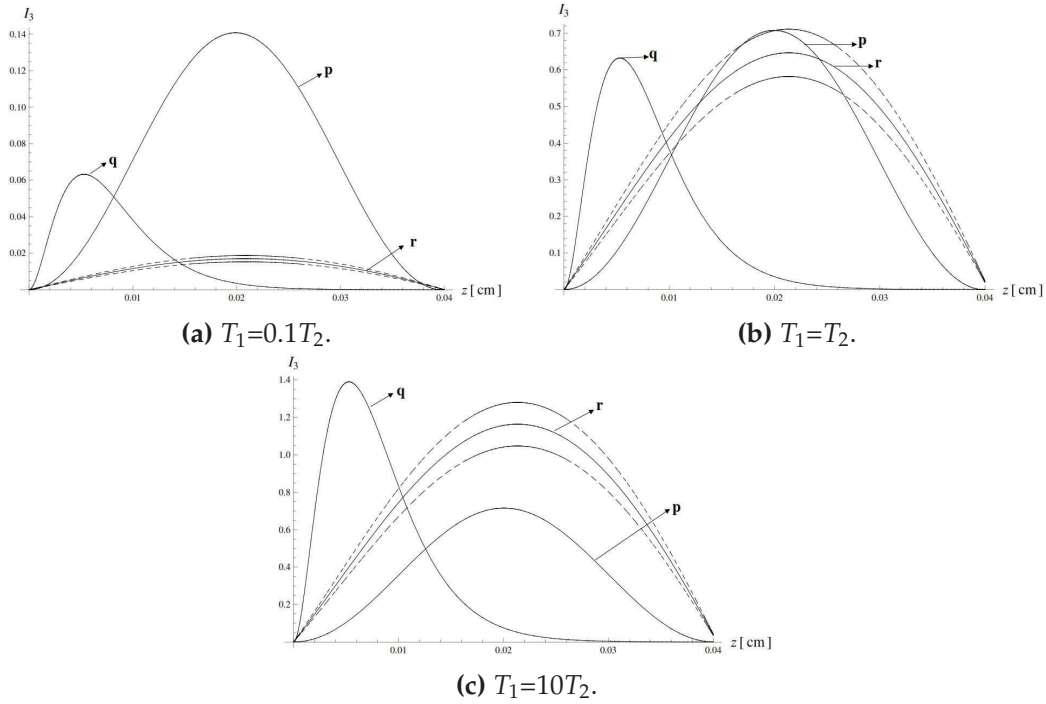


Figura 5.18: Variación de la intensidad del haz de señal respecto a la longitud de camino óptico para los tres casos de propagación considerando distintas relaciones entre los tiempos de relajación (T_1 y T_2), las líneas punteadas representan la tolerancia de $\pm 10\%$ bajo la cual se analiza la validez de los dos primeros casos frente al tercero. ($p \rightarrow 1^{er}$ Caso, $q \rightarrow 2^{do}$ Caso, $r \rightarrow 3^{er}$ Caso).

La explicación física asociada a esta tendencia se basa en el hecho que dada una saturación fija la absorción que sufre el campo aumenta conforme la concentración molecular aumenta, debido a que existe una mayor interacción entre el campo y las moléculas en la muestra de estudio.

De forma general se observa que conforme el valor del parámetro de saturación aumenta la intensidad de la señal también aumenta. Este proceso está asociado a la despoblación que sufre el estado fundamental por efecto de la saturación del haz de bombeo, dando origen a una mayor transmisión de los campos.

Las figuras 5.15-5.17 (a-e) muestran la variación de la señal respecto a la longitud de camino óptico al considerar diferentes valores para los parámetros de saturación y concentración molecular. Se han considerado el siguiente criterio para estudiar la validez de los dos primeros casos (aproximaciones) frente al tercero (caso real), la posición del máximo para los perfiles de intensidad del primer y segundo caso tienen que encontrarse en el siguiente rango: verticalmente dentro de un $\pm 10\%$ en el valor de la intensidad y horizontalmente dentro de un $\pm 0,6[cm]$ en el valor de la coordenada z . De esta manera los casos que cumplan este criterio podrán reempla-

5.5. PROPAGACIÓN DE LA SEÑAL DE MEZCLA DE CUATRO ONDAS - 3^{ER} CASO

-	N=0.01	N=0.1	N=0.5	N=1	N=10
S=0.05	3 ^{ero}	3 ^{ero}	3 ^{ero}	1 ^{ero} , 3 ^{ero}	3 ^{ero}
S=0.1	1 ^{ero} , 2 ^{do} , 3 ^{ero}	1 ^{ero} , 2 ^{do} , 3 ^{ero}	1 ^{ero} , 3 ^{ero}	3 ^{ero}	1 ^{ero} , 3 ^{ero}
S=0.4	3 ^{ero}	3 ^{ero}	3 ^{ero}	3 ^{ero}	3 ^{ero}

Cuadro 5.2: Estudio de la validez de los tres casos de propagación considerando una tolerancia de $\pm 10\%$ en la intensidad y de $\pm 0,6[cm]$ en la coordenada z, analizando distintos valores del parámetro de saturación y la concentración molecular.

-	0.1 T_2	T_2	10 T_2
T_1	3 ^{ero}	1 ^{ero} , 3 ^{ero}	3 ^{ero}

Cuadro 5.3: Estudio de la validez de los tres casos de propagación considerando una tolerancia de $\pm 10\%$ en la intensidad y de $\pm 0,6[cm]$ en la coordenada z, analizando distintos valores del tiempo de relajación transversal (T_2).

zar al tercero, dado que implican una mayor facilidad de cálculo.

En la figura 5.18 (a-c) se observa la dependencia de la intensidad de la señal a lo largo del camino óptico frente al valor del tiempo de relajación transversal (T_2), las líneas punteadas representan la tolerancia en el valor de intensidad $\pm 10\%$.

Los cuadros 5.2 y 5.3 resumen el análisis de validez de los dos primeros casos frente al tercero, bajo los criterios antes expuestos. En los recuadros se presenta el nombre de los casos que satisfacen estos criterios. De esta manera se puede realizar el análisis de propagación bajo una u otra aproximación frente al tercer caso, ya que se establece una coincidencia que permite obtener resultados reales usando un caso aproximado conllevando un menor esfuerzo de cálculo.

Se concluye que para la propagación del haz de señal, el primer caso de aproximación puede reemplazar al tercer caso bajo las siguientes condiciones: $\{S=0.05$ y $N=1, S=0.1$ y $N=0.01, S=0.1$ y $N=0.1, S=0.1$ y $N=0.5, S=0.1$ y $N=10, \text{ y } T_1 = T_2\}$, por otro lado el segundo caso de aproximación puede reemplazar al tercer caso bajo las siguientes condiciones: $\{S=0.1$ y $N=0.01, S=0.1$ y $N=0.1\}$.

Capítulo 6

Conclusiones

En esta investigación se ha presentado un método para resolver las EOEB para un sistema molecular de dos niveles inmerso en un reservorio térmico que interactúa con dos campos, uno de alta y uno de baja intensidad, conocidos como haz de bombeo y prueba, respectivamente. Se consideró la aproximación dipolar eléctrica para describir la interacción entre los campos electromagnéticos y el sistema molecular. La interacción entre el sistema molecular y el reservorio térmico se modela a través de la teoría cuántica de relajación [7]. La interacción entre estos dos subsistemas conduce a la generación de una variable estocástica $\xi(t)$ que da razón del desplazamiento Stark que sufre el nivel superior en el sistema de dos niveles, ocasionado por las colisiones moleculares de los componentes de ambos subsistemas. El método consiste en resolver las EOEB de forma perturbativa en la amplitud del haz de prueba hasta segundo orden y del haz de señal hasta primer orden. A diferencia de otros trabajos en los cuales el haz de prueba es tratado hasta primer orden [12 - 14]. Se logró identificar procesos multifotónicos asociados a los efectos de saturación del haz de bombeo, procesos de acoplamiento entre los campos de bombeo y prueba, como consecuencia de la mayor intensidad en el haz de prueba.

Se han resuelto las EOEB en el espacio de Fourier para las componentes de la matriz de densidad asociadas a la coherencia y a las poblaciones, ecuaciones (3.25 - 3.27). Se obtuvo la polarización macroscópica inducida por los campos de bombeo y prueba en el sistema molecular, ecuaciones (4.25 - 4.27). Se determinó la susceptibilidad no lineal asociada al proceso de MCO. Se logró estudiar de manera teórica las propiedades ópticas no lineales del sistema molecular: colorante orgánico cloruro verde de malaquita. Se estudió la respuesta del sistema molecular en el índice de refracción y en el coeficiente de absorción frente a los estímulos del campo de bom-

beo, prueba y señal, y en función de los parámetros moleculares que caracterizan al sistema.

Se realizó una comparación entre los fenómenos ópticos no lineales asociados tanto el haz de prueba a primer y a segundo orden. Se halló que el segundo orden en el haz de prueba influye a la generación de una red de difracción de origen poblacional que actúa como fuente de nuevas frecuencias, además de generar nuevos procesos de coherencia y acoplamiento asociados a la interferencia de los haces de prueba y bombeo. Se halló que el segundo orden en el haz de prueba influye con efectos de saturación al igual que el haz de bombeo, ocasionando la modulación espacial de las poblaciones en el sistema de dos niveles, lo cual no tiene lugar si el haz de prueba es considerado como un haz estrictamente débil.

En una segunda parte se estudió la propagación del haz de señal de mezcla de cuatro ondas. Se utilizó la ecuación de Maxwell que describe la propagación de las ondas electromagnéticas, ecuación (2.25). Se usaron las aproximaciones de Envolvente suave y de Estado estacionario. Se resolvió el sistema de ecuaciones de amplitud acopladas, ecuaciones (4.63 - 4.65), logrando así estudiar teóricamente el problema de propagación de la señal al viajar a través de 0.04 cm de camino óptico. Se consideró tres casos de propagación para la señal de MCO, los dos primeros proporcionaron soluciones analíticas, ecuaciones (4.76) y (4.84), respectivamente. El tercer caso proporcionó una solución numérica a la ecuación trascendental (4.89). Se estudió la validez de las soluciones analíticas frente a la numérica para distintos valores de los parámetros moleculares, considerando una tolerancia del $\pm 10\%$.

El estudio reveló que los parámetros de saturación y concentración molecular juegan un rol importante en el análisis de la propagación de la señal de mezcla de cuatro ondas y en la validez de los distintos modos de propagación, además de ser cruciales en la respuesta óptica del sistema, la cual es dada a través del índice de refracción y del coeficiente de absorción. Se determinó que el haz de prueba a segundo orden genera nuevos procesos no lineales, asociados a sus efectos de saturación.

Los resultados que se han obtenido están en perfecta concordancia con los obtenidos en investigaciones previas [12-14]. De esta manera se concluye que el estudio del efecto del segundo orden en el haz de prueba es de importancia ya que genera nuevos procesos multifotónicos en el medio material, que no son tomados en cuenta al considerar un haz estrictamente débil o un haz a primer orden. Adicionalmente la presente investigación muestra un análisis de la propagación de la señal, cuya intensidad se ve fuertemente afectada por el efecto del segundo orden en el haz de

prueba a través de la variación que sufre su intensidad a lo largo del camino óptico, evidencia respaldada por investigaciones previas [13-14]. Nuestro trabajo evidencia que los diferentes casos de aproximación que han sido considerados en el análisis de la propagación pueden reemplazar el caso numérico bajo ciertas condiciones de saturación y concentración molecular, lo cual representa un manera más rápida y sencilla de obtener resultados reales usando casos aproximados.

En un futuro se complementará esta investigación con el estudio del efecto inducido por el acoplamiento vibracional en las propiedades ópticas de un sistema molecular descrito a través de dos pozos de potencial electrónicos.

Apéndice A

Cálculo de la Población de Equilibrio e implementación del código en el programa Mathematica para el análisis de ρ_D^{dc} .

A.0.1. Cálculo de la Población de Equilibrio ρ_D^{dc}

Se considera la ecuación (3.51) del capítulo 3.

$$\frac{\rho_D^{dc}}{T_1} - \frac{\rho_D^{eq}}{T_1} = -2i\Omega_1\rho_{ab}(-\omega_1) - 2i\Omega_2\rho_{ab}(-\omega_2) + 2i\Omega_1^*(\omega_1)\rho_{ba}(\omega_1) + 2i\Omega_2^*\rho_{ba}(\omega_2), \quad (\text{A.1})$$

se sabe que:

$$\begin{aligned} \rho_{ab}(-\omega_1) &= \rho_{ba}^*(\omega_1), \\ \rho_{ab}(-\omega_2) &= \rho_{ba}^*(\omega_2). \end{aligned}$$

Reemplazando las ecuaciones (3.62), (3.64) junto a sus complejos conjugados en (A.1) y agrupando los términos de coherencia, incoherencia y acoplamiento:

$$\begin{aligned} \frac{\rho_D^{dc} - \rho_D^{eq}}{T_1} &= 2i(h_1^{incoh} - h_1^{*incoh})|\Omega_1|^2 + 2i(h_1^{coh} - h_1^{*coh})|\Omega_1|^2 \\ &+ 2i(h_2^{incoh} - h_2^{*incoh})|\Omega_2|^2 + 2i(h_2^{coh} - h_2^{*coh})|\Omega_2|^2 \\ &+ 2i(h_2^{coup} - h_1^{*coup})\Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^* + 2i(h_1^{coup} - h_2^{*coup})\Omega_1^{*2}\Omega_2\Omega_3. \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Se definen los siguientes parámetros, que corresponden a los coeficientes de la ecuación (A.2)

$$\begin{aligned}\tilde{h}_1^{incoh} &= h_1^{incoh} - h_1^{*incoh}, & \tilde{h}_1^{coh} &= h_1^{coh} - h_1^{*coh} \\ \tilde{h}_2^{incoh} &= h_2^{incoh} - h_2^{*incoh}, & \tilde{h}_2^{coh} &= h_2^{coh} - h_2^{*coh}.\end{aligned}$$

En lo que sigue se desarrolla el cálculo de cada uno de los coeficientes antes definidos. **Cálculo del coeficiente \tilde{h}_1^{incoh}**

$$\begin{aligned}\tilde{h}_1^{incoh} &= \frac{i\rho_D^{dc}}{D_1} + \frac{i\rho_D^{dc}}{D_1^*} \\ &= i\rho_D^{dc} \left(\frac{D_1^* + D_1}{|D_1|^2} \right)\end{aligned}$$

$$\text{con } D_i = \left[\frac{1}{T_2} + i(\xi - \omega_i) \right]$$

$$\begin{aligned}\tilde{h}_1^{incoh} &= i \frac{\rho_D^{dc}}{|D_1|^2} \left[\frac{1}{T_2} + i(\xi + \omega_1) + \frac{1}{T_2} - i(\xi + \omega_1) \right] \\ &= 2i \frac{\rho_D^{dc}}{T_2 |D_1|^2},\end{aligned}$$

Cálculo del coeficiente \tilde{h}_1^{coh}

$$\tilde{h}_1^{coh} = -\frac{2i|\Omega_2|^2 f_{1,-2}}{JD_1} \rho_D^{dc} - \frac{2i|\Omega_2|^2 f_{2,-1}}{J^* D_1^*} \rho_D^{dc} = -2i|\Omega_2|^2 \rho_D^{dc} \left(\frac{f_{1,-2}}{JD_1} + \frac{f_{2,-1}}{J^* D_1^*} \right),$$

desarrollando $f_{1,-2}$:

$$f_{1,-2} = \frac{1}{D_1} + \frac{1}{D_2^*} = \frac{\frac{2}{T_2} - i\Delta}{D_1 D_2^*},$$

$$f_{2,-1} = f_{1,-2}^* = \frac{\frac{2}{T_2} + i\Delta}{D_1^* D_2},$$

$$\tilde{h}_1^{coh} = -2i|\Omega_2|^2 \rho_D^{dc} \left(\frac{\frac{2}{T_2} - i\Delta}{JD_1 D_1 D_2^*} + \frac{\frac{2}{T_2} + i\Delta}{J^* D_1^* D_1 D_2} \right).$$

Cálculo del coeficiente \tilde{h}_2^{incoh}

$$\tilde{h}_2^{incoh} = \frac{i\rho_D^{dc}}{D_2} + \frac{i\rho_D^{dc}}{D_2^*} = 2i \frac{\rho_D^{dc}}{T_2 |D_2|^2}.$$

Cálculo del coeficiente \tilde{h}_2^{coh}

$$\begin{aligned}\tilde{h}_2^{coh} &= -\frac{2i|\Omega_1|^2 f_{2,-1}}{JD_2} \rho_D^{dc} - \frac{2i|\Omega_1|^2 f_{1,-2}}{J^* D_2^*} \rho_D^{dc} \\ &= -2i|\Omega_1|^2 \rho_D^{dc} \left(\frac{\frac{2}{T_2} + i\Delta}{JD_2 D_1^* D_2} + \frac{\frac{2}{T_2} - i\Delta}{J^* D_2^* D_1 D_2^*} \right)\end{aligned}$$

Cálculo del coeficiente $2i(h_2^{coup} - h_1^{*coup})\Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^*$

$$\begin{aligned}
& 2i(h_2^{coup} - h_1^{*coup})\Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^* = \\
& = 2i \left[\left(\frac{4i|\Omega_2|^2 f_{1,-2} f_{1,-1}}{J^* J} - \frac{2i f_{1,-3}}{J^*} \right) \frac{\rho_D^{dc}}{D_2} - \frac{2i(f_{1,-3} + f_{1,-2})}{J^* D_1^*} \rho_D^{dc} \right] \Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^* \\
& = \frac{4\Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^*\rho_D^{dc}}{J^* D_2} f_{1,-3} + \frac{4\Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^*\rho_D^{dc}}{J^* D_1^*} (f_{1,-3} + f_{1,-2}),
\end{aligned}$$

desarrollando $f_{1,-3}$:

$$f_{1,-3} = \frac{1}{D_1} + \frac{1}{D_3^*} = \frac{\frac{2}{T_2} + i\Delta}{D_1 D_3^*},$$

$$f_{3,-1} = f_{1,-3}^* = \frac{\frac{2}{T_2} - i\Delta}{D_1^* D_3},$$

$$2i(h_2^{coup} - h_1^{*coup})\Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^* = 4\Omega_1^2\Omega_2^*\Omega_3^*\rho_D^{dc} \left(\frac{\frac{2}{T_2} + i\Delta}{J^* D_2 D_1 D_3^*} + \frac{\frac{2}{T_2} + i\Delta}{J^* D_1^* D_1 D_3^*} + \frac{\frac{2}{T_2} - i\Delta}{J^* D_1^* D_1 D_2^*} \right).$$

Cálculo del coeficiente $2i(h_1^{coup} - h_2^{*coup})\Omega_1^{*2}\Omega_2\Omega_3$

$$\begin{aligned}
& 2i(h_1^{coup} - h_2^{*coup})\Omega_1^{*2}\Omega_2\Omega_3 \\
& = 2i \left[\left(\frac{4i|\Omega_2|^2 f_{2,-1} f_{1,-1}}{J J^*} - \frac{2i f_{3,-1}}{J} \right) \frac{\rho_D^{dc}}{D_2^*} - \frac{2i(f_{3,-1} + f_{2,-1})}{J D_1} \rho_D^{dc} \right] \Omega_1^{*2}\Omega_2\Omega_3 \\
& = \frac{4\Omega_1^{*2}\Omega_2\Omega_3\rho_D^{dc}}{J D_1} (f_{3,-1} + f_{2,-1}) + \frac{4\Omega_1^{*2}\Omega_2\Omega_3\rho_D^{dc}}{J D_2^*} f_{3,-1} \\
& = 4\Omega_1^{*2}\Omega_2\Omega_3\rho_D^{dc} \left(\frac{\frac{2}{T_2} - i\Delta}{J D_1 D_1^* D_3} + \frac{\frac{2}{T_2} + i\Delta}{J D_1 D_1^* D_2} + \frac{\frac{2}{T_2} - i\Delta}{J D_2^* D_1^* D_3} \right).
\end{aligned}$$

Cálculo de J

$$\begin{aligned}
J & = \Gamma_1 + 2|\Omega_1|^2 f_{3,-2} + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1} \\
& = \frac{1}{T_1} - i\Delta + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_1} + \frac{4|\Omega_1|^2}{D_3 D_2^*} \left(\frac{1}{T_2} + i\Delta \right),
\end{aligned}$$

para el caso particular en que $\omega_1 \approx \omega_2 = \omega_{\xi}$, se tendrá que:

$$\Delta = 0 \text{ y } D_1 \approx D_2 = D_{\xi},$$

y con eso las expresiones anteriores se reducirán a:

$$J = \frac{1}{T_1} + \frac{4|\Omega_1|^2 T_1 T_2}{T_1 T_2^2 |D_{\xi}|^2} + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_{\xi}},$$

definiendo $S_1 = |\Omega_1|^2 T_1 T_2$:

$$J = \frac{1}{T_1} \left(1 + \frac{4S_1}{T_2^2 |D_{\xi}|^2} \right) + \frac{2|\Omega_2|^2}{D_{\xi}}$$

se ha demostrado que para colorantes orgánicos el término $\frac{4S_1}{T_2^2 |D_{\xi}|^2} \ll 1$ [12-14] y $\frac{2|\Omega_2|^2}{D_{\xi}} \approx 0$ por lo tanto:

$$J = \frac{1}{T_1}, \quad (\text{A.3})$$

$$\tilde{h}_1^{incoh} = 2i \frac{\rho_D^{dc}}{T_2 |D_{\xi}|^2}, \quad (\text{A.4})$$

$$\tilde{h}_1^{coh} = -2i |\Omega_2|^2 \rho_D^{dc} \left(\frac{2T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} + \frac{2T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} \right), \quad (\text{A.5})$$

$$\tilde{h}_2^{incoh} = 2i \frac{\rho_D^{dc}}{T_2 |D_{\xi}|^2}, \quad (\text{A.6})$$

$$\tilde{h}_2^{coh} = -2i |\Omega_1|^2 \rho_D^{dc} \left(\frac{2T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} + \frac{2T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} \right), \quad (\text{A.7})$$

$$2i(h_2^{coup} - h_1^{*coup}) \Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* = 4\Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* \rho_D^{dc} \left(\frac{4T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} + \frac{2T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right), \quad (\text{A.8})$$

$$2i(h_1^{coup} - h_2^{*coup}) \Omega_1^* \Omega_2 \Omega_3 = 4\Omega_1^* \Omega_2 \Omega_3 \rho_D^{dc} \left(\frac{4T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} + \frac{2T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} \right). \quad (\text{A.9})$$

De esta manera al reemplazar las ecuaciones (A.4 - A.9) en (A.2) se tiene:

$$\begin{aligned} \frac{\rho_D^{dc} - \rho_D^{eq}}{T_1} = & -\frac{4|\Omega_1|^2 \rho_D^{dc}}{T_2 |D_{\xi}|^2} + 4|\Omega_1|^2 |\Omega_2|^2 \rho_D^{dc} \left(\frac{2T_1}{T_2 |D_{\xi}|^2} \right) \left(\frac{1}{D_{\xi}} + \frac{1}{D_{\xi}^*} \right) \\ & -\frac{4|\Omega_2|^2 \rho_D^{dc}}{T_2 |D_{\xi}|^2} + 4|\Omega_1|^2 |\Omega_2|^2 \rho_D^{dc} \left(\frac{2T_1}{T_2 |D_{\xi}|^2} \right) \left(\frac{1}{D_{\xi}} + \frac{1}{D_{\xi}^*} \right) \\ & + 4\Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* \rho_D^{dc} \left(\frac{4T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} + \frac{2T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right) \\ & + 4\Omega_1^* \Omega_2 \Omega_3 \rho_D^{dc} \left(\frac{4T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} + \frac{2T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} \right), \end{aligned}$$

se considerará:

$$\frac{1}{D_{\xi}} + \frac{1}{D_{\xi}^*} = \frac{2}{T_2 D_{\xi} D_{\xi}^*} = \frac{2}{T_2 |D_{\xi}|^2},$$

con lo que

$$\begin{aligned} \frac{\rho_D^{dc} - \rho_D^{eq}}{T_1} &= -\frac{4|\Omega_1|^2 \rho_D^{dc}}{T_2 |D_{\xi}|^2} + 4|\Omega_1|^2 |\Omega_2|^2 \rho_D^{dc} \left(\frac{4T_1}{T_2^2 |D_{\xi}|^4} \right) \\ &\quad - \frac{4\Omega_2^2 \rho_D^{dc}}{T_2 |D_{\xi}|^2} + 4|\Omega_1|^2 |\Omega_2|^2 \rho_D^{dc} \left(\frac{2T_1}{T_2^2 |D_{\xi}|^4} \right) \\ &\quad + 4\Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* \rho_D^{dc} \left(\frac{4T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} + \frac{2T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right) \\ &\quad + 4\Omega_1^{*2} \Omega_2 \Omega_3 \rho_D^{dc} \left(\frac{4T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} + \frac{2T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} \right), \end{aligned}$$

agrupando el primer y tercer término se tiene:

$$\begin{aligned} \frac{\rho_D^{dc} - \rho_D^{eq}}{T_1} &= -\frac{4}{T_2 |D_{\xi}|^2} (|\Omega_1|^2 + |\Omega_2|^2) \rho_D^{dc} + 32|\Omega_1|^2 |\Omega_2|^2 \left(\frac{T_1}{T_2^2 |D_{\xi}|^4} \right) \rho_D^{dc} \\ &\quad + 16\Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* \left(\frac{T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} \right) \rho_D^{dc} + 8\Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* \left(\frac{T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right) \rho_D^{dc} \\ &\quad + 16\Omega_1^{*2} \Omega_2 \Omega_3 \left(\frac{T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right) \rho_D^{dc} + 8\Omega_1^{*2} \Omega_2 \Omega_3 \left(\frac{T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} \right) \rho_D^{dc}, \end{aligned} \tag{A.10}$$

sea:

$$\begin{aligned} A &= -\frac{4}{T_2 |D_{\xi}|^2} (|\Omega_1|^2 + |\Omega_2|^2); \quad B = 32|\Omega_1|^2 |\Omega_2|^2 \left(\frac{T_1}{T_2^2 |D_{\xi}|^4} \right) \\ C &= 16\Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* \left(\frac{T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} \right); \quad C^* = 16\Omega_1^{*2} \Omega_2 \Omega_3 \left(\frac{T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right) \\ D &= 8\Omega_1^2 \Omega_2^* \Omega_3^* \left(\frac{T_1}{T_2 D_{\xi} |D_{\xi}|^2} \right); \quad D^* = 8\Omega_1^{*2} \Omega_2 \Omega_3 \left(\frac{T_1}{T_2 D_{\xi}^* |D_{\xi}|^2} \right). \end{aligned}$$

La ecuación (A.2) quedará expresada como:

$$\frac{\rho_D^{dc}}{T_1} - \frac{\rho_D^{eq}}{T_1} = A\rho_D^{dc} + B\rho_D^{dc} + C\rho_D^{dc} + D\rho_D^{dc} + C^*\rho_D^{dc} + D^*\rho_D^{dc},$$

$$\rho_D^{dc} = \frac{\frac{\rho_D^{eq}}{T_1}}{\left(\frac{1}{T_1} - A - B - C - D - C^* - D^* \right)}.$$

Para el caso de colorantes orgánicos se puede demostrar que: $D^* \ll C^* \ll D \ll C \ll B \ll A$ [12-14], solo se consideran los dos primeros términos de la expresión anterior.

$$\rho_D^{dc} = \frac{\frac{\rho_D^{eq}}{T_1}}{\left(\frac{1}{T_1} - A\right)},$$

$$\rho_D^{dc} = \frac{\frac{\rho_D^{eq}}{T_1}}{\left(\frac{1}{T_1} + \frac{4}{T_2|D_\xi|^2} (|\Omega_1|^2 + |\Omega_2|^2)\right)}$$

$$= \frac{\rho_D^{eq}}{\left(1 + \frac{4}{T_2^2|D_\xi|^2} S_{12}\right)},$$

donde: $S_{12} = S_1 + S_2 = |\Omega_1|^2 T_1 T_2 + |\Omega_2|^2 T_1 T_2$

$$\rho_D^{dc} = \frac{\rho_D^{eq}}{\left(1 + \frac{4}{T_2^2|D_\xi|^2} S_{12}\right)}. \quad (\text{A.11})$$

A.0.2. Código implementado en el programa Mathematica para el análisis de ρ_D^{dc}

Se presenta el código para graficar la población de equilibrio ρ_D^{dc} en función de los campos de prueba y bombeo.

CONSTANTES:

```
\[HBar] = 1.054571*10^-27;
c = 2.998*10^10;
\[Mu] = 2.81*10^-18;
T2 = 1.5*10^-12;
T1 = T2;
E1 = 80;
E2 = 40;
\[Omega] = 1.06*10^15;
\[Eta]0 = 1.33;
K1 = (\[Omega]*\[Eta]0)/(c);
K2 = 1*K1;
```

FÓRMULAS:

```
A1 = -(4*T2*\[Mu]^2/\[HBar]^2)*(E1^2 + E2^2);
```

```

B1 = 32 (T2^3*\[Mu]^4/\[HBar]^4)*(E1^2*E2^2);
C1 = 24 (T2^3*\[Mu]^4/\[HBar]^4)*(E1^2*E2) Cos[((2 K1 - K2)/100)*z];
D1 = 24 (T2^3*\[Mu]^4/\[HBar]^4)*(E1^2*E2) Cos[(-(2 K1 - K2)/100)*z];
\[Rho] = ((1/T1)/((1/T1) - A1 - B1 - C1 - D1));

```

```

A2 = -(4*T2*\[Mu]^2/\[HBar]^2)*(E1^2 + E6^2);
\[Rho]1 = ((1/T1)/((1/T1) - A2));
A3 = -(4*T2*\[Mu]^2/\[HBar]^2)*(E7^2 + E6^2);
\[Rho]3 = ((1/T1)/((1/T1) - A3));
A4 = -(4*T2*\[Mu]^2/\[HBar]^2)*(E7^2 + E2^2);
\[Rho]4 = ((1/T1)/((1/T1) - A4));

```

CÓDIGOS PARA GRAFICAR:

```

Plot[\[Rho], {z, 0, 0.04}, Frame -> True,
  AxesLabel -> {Style[HoldForm[z "[" cm "]"], FontSize -> 14],
    Style[HoldForm[Subsuperscript[\[Rho], D, (dc)]], FontSize -> 14]},
  PlotStyle -> {Black, Thickness[0.005]}]

```

```

Plot[\[Rho]1, {E6, 0, 40}, Frame -> True, PlotRange -> All,
  AxesLabel -> {Style[HoldForm[Subscript["E",
    "2"] "[" "Dina \!\(\*SuperscriptBox[\(Stc\), \(-1\)]\)"]],
    FontSize -> 14],
    Style[HoldForm[Subsuperscript[\[Rho], D, (dc)]], FontSize -> 14]},
  PlotStyle -> {Black, Thickness[0.005]}]

```

```

Plot[\[Rho]4, {E7, 0, 80}, Frame -> True, PlotRange -> All,
  AxesLabel -> {Style[HoldForm[Subscript["E",
    "1"] "[" "Dina \!\(\*SuperscriptBox[\(Stc\), \(-1\)]\)"]],
    FontSize -> 14],
    Style[HoldForm[Subsuperscript[\[Rho], D, (dc)]], FontSize -> 14]},
  PlotStyle -> {Black, Thickness[0.005]}]

```

```

Plot3D[\[Rho]3, {E7, 0, 80}, {E6, 0, 40}, PlotRange -> Full,
  AxesLabel -> {Style[HoldForm[Subscript["E", "1"]], FontSize -> 14],
    Style[HoldForm[Subscript["E", "2"]], FontSize -> 14],
    Style[HoldForm[Subsuperscript[\[Rho], D, (dc)]], FontSize -> 14]},
  ColorFunction -> {ColorData["BlueGreenYellow"]}

```

Apéndice B

Cálculo del término $A(0)$.

El cálculo presentado a continuación fue desarrollado por el profesor José Luis Paz y colaboradores.

A través del teorema de convolución logran determinar la expresión analítica para $A(0)$.

Se toman las ecuaciones (4.46) y (4.47):

$$Re[\langle A^{(0)} \rangle] = \frac{1}{T_2 \sqrt{2\pi\gamma\tau}} \theta_1 * \theta_2(\Delta_1)$$

$$Im[\langle A^{(0)} \rangle] = \frac{1}{\sqrt{2\pi\gamma\tau}} \theta_3 * \theta_2(\Delta_1)$$

con:

$$\theta_1 = \frac{1}{\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - x)^2}, \quad \theta_2 = e^{-\frac{x^2}{2\pi\gamma\tau}}, \quad \theta_3 = \frac{(\Delta_1 - x)}{\frac{1}{T_2^2} + (\Delta_1 - x)^2},$$

Aplicando el teorema de convolución, se tiene:

$$\mathcal{F}\{Re[\langle A^{(0)} \rangle]\} = \frac{1}{2} e^{\left(-\gamma\tau \frac{x^2}{2} - \frac{|x|}{2}\right)},$$

se toma la transformada inversa:

$$Re[\langle A^{(0)} \rangle] = \frac{1}{\sqrt{\gamma\tau}} Re[\Theta],$$

donde la función Θ esta dada por:

$$\Theta = \left[1 - erf\left(\frac{T_2^{-1} - i\Delta_1}{\sqrt{\gamma\tau}}\right) \right] e^{\left[\frac{(T_2^{-1} - i\Delta_1)^2}{2\gamma\tau}\right]},$$

con $erf(v)$ como la función de error evaluada en v .

De igual forma se tendrá que:

$$Im[\langle A^{(0)} \rangle] = \frac{1}{\sqrt{\gamma\tau}} Im[\Theta],$$

por lo que:

$$\langle A^{(0)} \rangle = \frac{1}{\sqrt{\gamma\tau}} (Re[\Theta] + i Im[\Theta]).$$

Se evalúa la función Θ .

$$erf(T) = erf\left(\frac{T_2^{-1} - i\Delta_1}{\sqrt{\gamma\tau}}\right) = \frac{2}{\pi} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n!(2n+1)} \left(\frac{T_2^{-1} - i\Delta_1}{\sqrt{\gamma\tau}}\right)^{2n+1},$$

la cual converge lentamente, se utiliza el hecho que $erf(T) \ll 1$ para simplificar la expresión anterior:

$$\begin{aligned} \Theta &= e^{\left[\frac{T_2^{-1} - i\Delta_1^2}{2\gamma\tau}\right]} \\ &= e^{\left[\frac{T_2^{-2} - 2i\Delta_1 T_2^{-1} - \Delta_1^2}{2\gamma\tau}\right]} \\ &= e^{\left(\frac{T_2^{-2} - \Delta_1^2}{2\gamma\tau}\right)} e^{\left(\frac{-2i\Delta_1 T_2^{-1}}{2\gamma\tau}\right)}. \end{aligned}$$

Si $\alpha = \frac{\Delta_1 T_2^{-1}}{\gamma\tau}$ y usando la fórmula de Euler para números complejos: $e^{-i\alpha} = \cos(\alpha) - i\text{sen}(\alpha)$ se tendrá que:

$$\Theta = e^{\left(\frac{T_2^{-2} - \Delta_1^2}{2\gamma\tau}\right)} \left[\cos\left(\frac{\Delta_1 T_2^{-1}}{\gamma\tau}\right) - i\text{sen}\left(\frac{\Delta_1 T_2^{-1}}{\gamma\tau}\right) \right].$$

con lo cual se obtienen las expresiones buscadas:

$$Re[\Theta] = e^{\left(\frac{T_2^{-2} - \Delta_1^2}{2\gamma\tau}\right)} \cos\left(\frac{\Delta_1 T_2^{-1}}{\gamma\tau}\right),$$

$$Im[\Theta] = -e^{\left(\frac{T_2^{-2} - \Delta_1^2}{2\gamma\tau}\right)} \text{sen}\left(\frac{\Delta_1 T_2^{-1}}{\gamma\tau}\right).$$

Apéndice C

Código Implementado en el programa Mathematica para el análisis de las propiedades ópticas.

Se presenta el código implementado en el programa Mathematica para graficar los perfiles dispersivos y absortivos, por cuestión de espacio solo se muestra el código que conduce a las gráficas de las propiedades ópticas para diferentes valores del tiempo de relajación transversal (T_2), de forma análoga se obtienen las gráficas para los distintos parámetros moleculares: concentración (N), saturación (S), factor de acoplamiento con el baño térmico (σ) y relación entre los tiempos de relajación ($T_1 = a T_2$) con $a \in Z^+$.

CONSTANTES:

```
\[HBar] = 1.054571*10^-27;  
c = 2.998*10^10;  
NefT21 = 6.02*10^17;  
NefT22 = 6.02*10^17;  
NefT23 = 6.02*10^17;  
NefT24 = 6.02*10^17;  
\[Rho] = 1;  
\[Mu] = 2.81*10^-18;  
T21 = 1.5*10^-12;  
T24 = 1.8*10^-12;  
T22 = 2.2*10^-12;  
T23 = 2.6*10^-12;
```

```

ST21 = 0.1;
ST22 = 0.1;
ST23 = 0.1;
ST24 = 0.1;
\[Sigma]1 = 1/T21;
\[Sigma]2 = 1/T22;
\[Sigma]3 = 1/T23;
\[Sigma]4 = 1/T24;
r1 = 1/T21;
r2 = 1/T22;
r3 = 1/T23;
r4 = 1/T24;
\[Eta]0 = 1.33;
\[Omega] = 1.06*10^15;
E1 = 80;
E2 = 8;
T11 = 1*T21;
T12 = 1*T22;
T13 = 1*T23;
T14 = 1*T24;

```

FÓRMULAS:

```

reA0T21 = (1/(((2* Pi)^0.5) \[Sigma]1)) (Exp[(r1^(2) - \
\[CapitalDelta]^(2))/(2 \[Sigma]1^2)]) Cos\[\[CapitalDelta]*r1/\[Sigma]1^2];
imA0T21 = (-1/(((2*Pi)^0.5) \[Sigma]1)) (Exp[(r1^(2) - \
\[CapitalDelta]^(2))/(2 \[Sigma]1^2)]) Sin\[\[CapitalDelta]*r1/\[Sigma]1^2];
imA1T21 = -(T21/2) (D[reA0T21, {\[CapitalDelta]}]);
reA1T21 = (T21/2) (T21 reA0T21 - D[reA0T21, {r1}]);
imA2T21 = -(T21/4) (D[reA1T21, {\[CapitalDelta]}]);
reA2T21 = (T21/4) (T21 (reA1T21) - D[reA1T21, {r1}]);
imA3T21 = -(T21/6) (D[reA2T21, {\[CapitalDelta]}]);
reA3T21 = (T21/6) (T21 (reA2T21) - D[reA2T21, {r1}]);
imA4T21 = -(T21/8) (D[reA3T21, {\[CapitalDelta]}]);
reA4T21 = (T21/8) (T21 (reA3T21) - D[reA3T21, {r1}]);
imA5T21 = -(T21/10) (D[reA4T21, {\[CapitalDelta]}]);
reA5T21 = (T21/10) (T21 (reA4T21) - D[reA4T21, {r1}]);

```

```

imA6T21 = -(T21/12) (D[reA5T21, {\[CapitalDelta]}]);
reA6T21 = (T21/12) (T21 (reA5T21) - D[reA5T21, {r1}]);
imA7T21 = -(T21/14) (D[reA6T21, {\[CapitalDelta]}]);
reA7T21 = (T21/14) (T21 (reA6T21) - D[reA6T21, {r1}]);

imChiincoh5GT21 = (
  NefT21 (\[Mu]^2) \[Rho] )/\[HBar] ((reA0T21) - (4 ST21 (reA1T21))/
    T21^2 + (16 ST21^2 (reA2T21))/T21^4 - (64 ST21^3 ((reA3T21)))/
    T21^6 + (256 ST21^4 (reA4T21))/T21^8 + (1024 ST21^5 (reA5T21))/
    T21^10);

reChiincoh5GT21 = -((
  NefT21 (\[Mu]^2) \[Rho] )/\[HBar]) ((imA0T21) -
    (4 ST21 (imA1T21))/T21^2 + (16 ST21^2 (imA2T21))/T21^4 -
    (64 ST21^3 ( imA3T21))/T21^6 + (256 ST21^4 (imA4T21))/T21^8 +
    (1024 ST21^5 (imA5T21))/T21^10);

reChicoh5GT21 =
  1/(T21 \[HBar]^3)
  4 E1^2 NefT21 T12 \[Mu]^4 \[Rho] ((imA1T21) -
    (4 ST21 (imA2T21))/T21^2 + (16 ST21^2 (imA3T21))/T21^4 -
    (64 ST21^3 (imA4T21))/T21^6 + (256 ST21^4 (imA5T21))/T21^8 -
    (1024 ST21^5 (imA6T21))/T21^10) - 1/(T21^2 \[HBar]^5)
  16 E1^2 ET21^2 NefT21 T12^2 \[Mu]^6 \[Rho] ((imA2T21) -
    (4 ST21 (imA3T21))/T21^2 + (16 ST21^2 (imA4T21))/T21^4 -
    (64 ST21^3 (imA5T21))/T21^6 + (256 ST21^4 (imA6T21))/T21^8 -
    (1024 ST21^5 (imA7T21))/T21^10);

imChicoh5GT21 = -1/(T21 \[HBar]^3)
  4 E1^2 NefT21 T12 \[Mu]^4 \[Rho] ((reA1T21) -
    (4 ST21 (reA2T21))/T21^2 + (16 ST21^2 (reA3T21))/T21^4 -
    (64 ST21^3 (reA4T21))/T21^6 + (256 ST21^4 (reA5T21))/T21^8 -
    (1024 ST21^5 (reA6T21))/T21^10) + 1/(T21^2 \[HBar]^5)
  16 E1^2 ET21^2 NefT21 T12^2 \[Mu]^6 \[Rho] ((reA2T21) -
    (4 ST21 (reA3T21))/T21^2 + (16 ST21^2 (reA4T21))/T21^4 -
    (64 ST21^3 (reA5T21))/T21^6 + (256 ST21^4 (reA6T21))/T21^8 -

```

$(1024 \text{ ST}21^5 (\text{reA}7\text{T}21))/\text{T}21^{10}$;

$\text{Eta}5\text{G}2\text{doT}21 = (\text{Eta}0^2 + 4 \text{ Pi} (\text{reChiincoh}5\text{GT}21 + \text{reChicoh}5\text{GT}21))^0.5$;

$\text{Alpha}5\text{G}2\text{doT}21 = (2 \text{ Pi} \text{ Omega}/c) ((\text{imChiincoh}5\text{GT}21 + \text{imChicoh}5\text{GT}21)/\text{Eta}5\text{G}2\text{doT}21)$;

CÓDIGOS PARA GRAFICAR:

<< PlotLegends‘

```
Plot[{Alpha5G2doT21/1400, Alpha5G2doT24/1400, Alpha5G2doT22/1400,
  Alpha5G2doT23/1400}, {\[CapitalDelta], -10^12.32, 10^12.32},
  AxesLabel -> {Style[
    HoldForm[Subscript["\[CapitalDelta]", "1"] "[" Superscript[s, -1] ""]],
    FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["\[Alpha] (\!\(\*SubscriptBox[\(\[Omega]\), \{3\}\)])"],
    FontSize -> 14]},
  PlotLegend -> {"!\(\*SubscriptBox[\(T\), \
\{2\}\]=1.5\!\(\*SuperscriptBox[\(x10\), \{-12\}\])",
  "\!\(\*SubscriptBox[\(T\), \
\{2\}\]=1.8\!\(\*SuperscriptBox[\(x10\), \{-12\}\])",
  "\!\(\*SubscriptBox[\(T\), \
\{2\}\]=2.2\!\(\*SuperscriptBox[\(x10\), \{-12\}\])",
  "\!\(\*SubscriptBox[\(T\), \
\{2\}\]=2.6\!\(\*SuperscriptBox[\(x10\), \{-12\}\])"},
  LegendPosition -> {1.1, -0.4}]
```

```
Plot[{Eta5G2doT21, Eta5G2doT24, Eta5G2doT22,
  Eta5G2doT23}, {\[CapitalDelta], -10^12.35, 10^12.35},
  AxesLabel -> {Style[
    HoldForm[Subscript["\[CapitalDelta]", "1"] "[" Superscript[s, -1] ""]],
    FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["\[Eta] (\!\(\*SubscriptBox[\(\[Omega]\), \{3\}\)])"],
    FontSize -> 14]},
  PlotLegend -> {"!\(\*SubscriptBox[\(T\), \
\{2\}\]=1.5\!\(\*SuperscriptBox[\(x10\), \{-12\}\])",
  "\!\(\*SubscriptBox[\(T\), \
\{2\}\]=1.8\!\(\*SuperscriptBox[\(x10\), \{-12\}\])",
```

```
"!\(\*SubscriptBox[\(T\), \  
\(2\)]\) = 2.2!\(\*SuperscriptBox[\(x10\), \(-12\)]\)\"",  
"\!\(\*SubscriptBox[\(T\), \  
\(2\)]\) = 2.6!\(\*SuperscriptBox[\(x10\), \(-12\)]\)\"",  
LegendPosition -> {1.1, -0.4}]
```

Apéndice D

Código Implementado en el programa Mathematica para el análisis de la propagación de la señal de MCO.

Se presenta el código implementado en el programa Mathematica para graficar los perfiles de atenuación del haz de señal, por cuestión de espacio solo se muestra el código que conduce a las gráficas del primer caso de propagación, de forma análoga se obtienen las gráficas para los dos restantes casos.

CONSTANTES:

```
\[HBar] = 1.054571*10^-27;  
c = 2.998*10^10;  
\[Rho] = 1;  
\[Mu] = 2.81*10^-18;  
NefT21 = 6.02*10^17;  
T21 = 1.1*10^-12;  
T12 = T21;  
\[Sigma]1 = (1/T21);  
r1 = 1/T21;  
\[Eta]0 = 1.33;  
\[Omega] = 1.06*10^15;  
E1 = 80;  
ET21 = 20;  
ST21 = 0.1;  
\[CapitalDelta] = 1.1*10^-12;
```

$$\backslash[\text{Alpha}]_{30} = a \cdot 600;$$

FÓRMULAS:

$$\text{reA0T21} = (1/(((2 \cdot \text{Pi})^{0.5} \backslash[\text{Sigma}]_1)) (\text{Exp}[(r_1^2) - \backslash[\text{CapitalDelta}]^2]/(2 \backslash[\text{Sigma}]_1^2))) \text{Cos}[\backslash[\text{CapitalDelta}] \cdot r_1 / \backslash[\text{Sigma}]_1^2];$$

$$\text{imA0T21} = (-1/(((2 \cdot \text{Pi})^{0.5} \backslash[\text{Sigma}]_1)) (\text{Exp}[(r_1^2) - \backslash[\text{CapitalDelta}]^2]/(2 \backslash[\text{Sigma}]_1^2))) \text{Sin}[\backslash[\text{CapitalDelta}] \cdot r_1 / \backslash[\text{Sigma}]_1^2];$$

$$\text{imA1T21} = -(T_{21}/2) (D[\text{reA0T21}, \{\backslash[\text{CapitalDelta}]\}]);$$

$$\text{reA1T21} = (T_{21}/2) (T_{21} \text{reA0T21} - D[\text{reA0T21}, \{r_1\}]);$$

$$\text{imA2T21} = -(T_{21}/4) (D[\text{reA1T21}, \{\backslash[\text{CapitalDelta}]\}]);$$

$$\text{reA2T21} = (T_{21}/4) (T_{21} (\text{reA1T21}) - D[\text{reA1T21}, \{r_1\}]);$$

$$\text{imA3T21} = -(T_{21}/6) (D[\text{reA2T21}, \{\backslash[\text{CapitalDelta}]\}]);$$

$$\text{reA3T21} = (T_{21}/6) (T_{21} (\text{reA2T21}) - D[\text{reA2T21}, \{r_1\}]);$$

$$\text{imA4T21} = -(T_{21}/8) (D[\text{reA3T21}, \{\backslash[\text{CapitalDelta}]\}]);$$

$$\text{reA4T21} = (T_{21}/8) (T_{21} (\text{reA3T21}) - D[\text{reA3T21}, \{r_1\}]);$$

$$\text{imA5T21} = -(T_{21}/10) (D[\text{reA4T21}, \{\backslash[\text{CapitalDelta}]\}]);$$

$$\text{reA5T21} = (T_{21}/10) (T_{21} (\text{reA4T21}) - D[\text{reA4T21}, \{r_1\}]);$$

$$\text{imA6T21} = -(T_{21}/12) (D[\text{reA5T21}, \{\backslash[\text{CapitalDelta}]\}]);$$

$$\text{reA6T21} = (T_{21}/12) (T_{21} (\text{reA5T21}) - D[\text{reA5T21}, \{r_1\}]);$$

$$\text{imA7T21} = -(T_{21}/14) (D[\text{reA6T21}, \{\backslash[\text{CapitalDelta}]\}]);$$

$$\text{reA7T21} = (T_{21}/14) (T_{21} (\text{reA6T21}) - D[\text{reA6T21}, \{r_1\}]);$$

$$\begin{aligned} \text{reChiacoup5GT21} = & (2 \text{NefT21} (\backslash[\text{Mu}]^2) \backslash[\text{Rho}]) / \backslash[\text{HBar}]^1 \cdot (2/T_{21}^2) * \\ & \text{ST21} * ((\text{reA1T21}) - (4 \text{ST21} (\text{reA2T21}))/T_{21}^2 + (16 \text{ST21}^2 (\text{reA3T21}))/ \\ & T_{21}^4 - (64 \text{ST21}^3 (\text{reA4T21}))/T_{21}^6 + (256 \text{ST21}^4 (\text{reA5T21}))/ \\ & T_{21}^8 - (1024 \text{ST21}^5 (\text{reA6T21}))/T_{21}^{10}); \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{imChiacoup5GT21} = & (2 \text{NefT21} (\backslash[\text{Mu}]^2) \backslash[\text{Rho}]) / \backslash[\text{HBar}]^1 \cdot (2/T_{21}^2) * \\ & \text{ST21} * ((\text{imA1T21}) - (4 \text{ST21} (\text{imA2T21}))/T_{21}^2 + (16 \text{ST21}^2 (\text{imA3T21}))/ \\ & T_{21}^4 - (64 \text{ST21}^3 (\text{imA4T21}))/T_{21}^6 + (256 \text{ST21}^4 (\text{imA5T21}))/ \\ & T_{21}^8 - (1024 \text{ST21}^5 (\text{imA6T21}))/T_{21}^{10}); \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{imChiincoh5GT21} = & (\\ & \text{NefT21} (\backslash[\text{Mu}]^2) \backslash[\text{Rho}]) / \backslash[\text{HBar}] ((\text{reA0T21}) - (4 \text{ST21} (\text{reA1T21}))/ \\ & T_{21}^2 + (16 \text{ST21}^2 (\text{reA2T21}))/T_{21}^4 - (64 \text{ST21}^3 ((\text{reA3T21}))/ \\ & T_{21}^6 + (256 \text{ST21}^4 (\text{reA4T21}))/T_{21}^8 + (1024 \text{ST21}^5 (\text{reA5T21}))/ \end{aligned}$$

T_{21}^{10});

$$\begin{aligned} \text{reChiincoh5GT21} = -((& \\ \text{NefT21 } (\backslash[\text{Mu}]^2 \backslash[\text{Rho}])/\backslash[\text{HBar}]) & ((\text{imA0T21}) - \\ (4 \text{ ST21 } (\text{imA1T21}))/\text{T21}^2 + (16 \text{ ST21}^2 & (\text{imA2T21}))/\text{T21}^4 - \\ (64 \text{ ST21}^3 (\text{imA3T21}))/\text{T21}^6 + (256 \text{ ST21}^4 & (\text{imA4T21}))/\text{T21}^8 + \\ (1024 \text{ ST21}^5 (\text{imA5T21}))/\text{T21}^{10}); & \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{reChicoh5GT21} = & \\ 1/(\text{T21}^2 \backslash[\text{HBar}]^1) & \\ 4 \text{ NefT21 } \backslash[\text{Mu}]^2 \backslash[\text{Rho}] \text{ ST21} * ((\text{imA1T21}) - & (4 \text{ ST21 } (\text{imA2T21}))/ \\ \text{T21}^2 + (16 \text{ ST21}^2 (\text{imA3T21}))/\text{T21}^4 - (64 \text{ ST21}^3 & (\text{imA4T21}))/ \\ \text{T21}^6 + (256 \text{ ST21}^4 (\text{imA5T21}))/\text{T21}^8 - (1024 \text{ ST21}^5 & (\text{imA6T21}))/ \\ \text{T21}^{10}) - 1/(\text{T21}^3 \backslash[\text{HBar}]^3) & \\ 16 \text{ ET21}^2 \text{ NefT21 } \text{T12}^1 \backslash[\text{Mu}]^4 \backslash[\text{Rho}] \text{ ST21} * & ((\text{imA2T21}) - \\ (4 \text{ ST21 } (\text{imA3T21}))/\text{T21}^2 + (16 \text{ ST21}^2 (\text{imA4T21}))/\text{T21}^4 - & \\ (64 \text{ ST21}^3 (\text{imA5T21}))/\text{T21}^6 + (256 \text{ ST21}^4 (\text{imA6T21}))/\text{T21}^8 - & \\ (1024 \text{ ST21}^5 (\text{imA7T21}))/\text{T21}^{10}); & \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{imChicoh5GT21} = - (1/(\text{T21}^2 \backslash[\text{HBar}]^1)) & \\ 4 \text{ NefT21 } \backslash[\text{Mu}]^2 \backslash[\text{Rho}] \text{ ST21} * ((\text{reA1T21}) - & (4 \text{ ST21 } (\text{reA2T21}))/ \\ \text{T21}^2 + (16 \text{ ST21}^2 (\text{reA3T21}))/\text{T21}^4 - (64 \text{ ST21}^3 & (\text{reA4T21}))/ \\ \text{T21}^6 + (256 \text{ ST21}^4 (\text{reA5T21}))/\text{T21}^8 - (1024 \text{ ST21}^5 & (\text{reA6T21}))/ \\ \text{T21}^{10}) + 1/(\text{T21}^3 \backslash[\text{HBar}]^3) & \\ 16 \text{ ET21}^2 \text{ NefT21 } \text{T12}^1 \backslash[\text{Mu}]^4 \backslash[\text{Rho}] \text{ ST21} * & ((\text{reA2T21}) - \\ (4 \text{ ST21 } (\text{reA3T21}))/\text{T21}^2 + (16 \text{ ST21}^2 (\text{reA4T21}))/\text{T21}^4 - & \\ (64 \text{ ST21}^3 (\text{reA5T21}))/\text{T21}^6 + (256 \text{ ST21}^4 (\text{reA6T21}))/\text{T21}^8 - & \\ (1024 \text{ ST21}^5 (\text{reA7T21}))/\text{T21}^{10}); & \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \backslash[\text{Eta}]_3 &= (\backslash[\text{Eta}]_0^2 + 4 \text{ Pi } (\text{reChiincoh5GT21} + \text{reChicoh5GT21}))^{0.5}; \\ \backslash[\text{Alpha}]_3 &= (2 \text{ Pi } \backslash[\text{Omega}] / c) ((\text{imChiincoh5GT21} + \text{imChicoh5GT21})/\backslash[\text{Eta}]_3); \end{aligned}$$

FÓRMULAS PRIMER CASO:

$$\begin{aligned} \text{Re}\backslash[\text{CapitalPsi}]_3 &= (2 \backslash[\text{Pi}] \backslash[\text{Omega}]) / (\backslash[\text{Eta}]_0 * c) E_1^2 * \text{reChiacoup5GT21}; \\ \text{Im}\backslash[\text{CapitalPsi}]_3 &= (2 \backslash[\text{Pi}] \backslash[\text{Omega}]) / (\backslash[\text{Eta}]_0 * c) E_1^2 * \text{imChiacoup5GT21}; \\ \text{phi}^2 &= (\text{Re}\backslash[\text{CapitalPsi}]_3^2 + \text{Im}\backslash[\text{CapitalPsi}]_3^2); \end{aligned}$$

```

\[CapitalDelta]k = 158;
I3 = (phi2)*(Sinh[(phi2 - (\[CapitalDelta]k/2)^2)^(1/2) *
      z])^2/(phi2 - (\[CapitalDelta]k/2)^2)*ET21^2;

```

FÓRMULAS SEGUNDO CASO:

```

\[Eta]3 = (\[Eta]0^2 + 4 Pi (reChiincoh5GT21 + reChicoh5GT21))^0.5;
\[Alpha]3 = (2 Pi \[Omega] /c) ((imChiincoh5GT21 + imChicoh5GT21)/\[Eta]3);
Re\[CapitalPsi]3 = (2 \[Pi] \[Omega])/(\[Eta]3* c)* reChiacoup5GT21;
Im\[CapitalPsi]3 = (2 \[Pi] \[Omega])/(\[Eta]3* c)* imChiacoup5GT21;
phi = Re\[CapitalPsi]3 + I Im\[CapitalPsi]3;
\[CapitalDelta]k = 158;
phi2 = Re\[CapitalPsi]3^2 + Im\[CapitalPsi]3^2;

```

```

Derivada\[CapitalDelta]k = 1580;
Derivadaalpha = D\[Alpha]3, {ST21}];
DerivadaRephi = D[Re\[CapitalPsi]3, {ST21}];
DerivadaRephi2 = D[Re\[CapitalPsi]3^2, {ST21}];
DerivadaImphi = D[Im\[CapitalPsi]3, {ST21}];
DerivadaImphi2 = D[Im\[CapitalPsi]3^2, {ST21}];
DerivadaLnphi2 = D[Log[phi2], {ST21}];

```

```

ReW0 = (2*(\[Alpha]30)*
      S0*\[CapitalDelta]k z Derivada\[CapitalDelta]k +
      4*(phi2)) + (8*(\[Alpha]30)*S0*
      Derivadaalpha - \[CapitalDelta]k^2) + (((\[Alpha]30)*
      S0*\[CapitalDelta]k/(phi2)) *(Re\[CapitalPsi]3*DerivadaImphi -
      Im\[CapitalPsi]3*DerivadaRephi));
ImW0 = -2*((\[Alpha]30)*S0*\[CapitalDelta]k/(phi2))*(DerivadaRephi2 +
      DerivadaImphi2);
W02 = (ReW0^2 + ImW0^2);
P1 = Exp[-(2 (\[Alpha]3/17) + (\[Alpha]30/17)*S0* DerivadaLnphi2)*z];
ReW = 1/2*((W02)^(1/4))*Cos[(ArcTan[(ImW0/ReW0)])/2];
ImW = 1/2*((W02)^(1/4))*Sin[(ArcTan[(ImW0/ReW0)])/2];
W2 = ReW^2 + ImW^2;
P2 = ((Sinh[(ReW*z)/25])^2)/(W2);
P3 = ((Sin[(ImW*z)/5])^2)/(W2);

```

P4 = (P2 + P3);
I3 = (4*phi2)*(P1)*(P4)*ET21^2;

FÓRMULAS TERCER CASO:

Re\[\CapitalPsi]3 = (2 \[Pi] \[\Omega])/(\[Eta]3* c)* reChiacoup5GT21;
Im\[\CapitalPsi]3 = (2 \[Pi] \[\Omega])/(\[Eta]3* c)* imChiacoup5GT21;
\[CapitalDelta]k = 0.0158;
phi = Re\[\CapitalPsi]3 + I Im\[\CapitalPsi]3;
phi2 = Re\[\CapitalPsi]3^2 + Im\[\CapitalPsi]3^2;
Derivada\[CapitalDelta]k = 1580;
Derivadaalpha = D\[Alpha]3, {ST21};
DerivadaRephi = D[Re\[\CapitalPsi]3, {ST21}];
DerivadaRephi2 = D[Re\[\CapitalPsi]3^2, {ST21}];
DerivadaImphi = D[Im\[\CapitalPsi]3, {ST21}];
DerivadaImphi2 = D[Im\[\CapitalPsi]3^2, {ST21}];
DerivadaLnphi2 = D[Log[phi2], {ST21}];
omega = (2 \[Pi]*\[Omega]*\[Mu]^2*\[Rho]*T21)/(\[HBar]*\[Eta]3*c);
b = 1 + \[CapitalDelta]^2*T21^2;

\[Phi]1 = (2*(\[Alpha]30) - I*\[CapitalDelta]k) + (2*omega*
S0) ((1/(2*phi2))*(DerivadaRephi2 + DerivadaImphi2) +
I ((z *Derivada\[CapitalDelta]k) + (1/(phi2)) \[CapitalDelta]k)
*(Re\[\CapitalPsi]3*DerivadaImphi - Im\[\CapitalPsi]3*DerivadaRephi))*
Exp[(-2*omega*z + (4*(S0/b))) S0] ;
\[Phi]2 = (\[Alpha]3^2 - phi2 - I \[Alpha]3*\[CapitalDelta]k) + (2*omega*
S0) (((\[Alpha]3/(2*phi2))*(DerivadaRephi2 + DerivadaImphi2) -
Derivadaalpha) +I ((\[Alpha]3* z*
Derivada\[CapitalDelta]k) + (1/(phi2)) *(Re\[\CapitalPsi]3*
DerivadaImphi - Im\[\CapitalPsi]3*DerivadaRephi))*
Exp[(-2*omega*z + (4*(S0/b))) S0];

s = NDSolve[{E3''[z] + \[Phi]1* E3'[z] + \[Phi]2*E3[z] == 0,
E3[0] == 0.1 + I 0.1, E3'[0] == 0.1 + I 0.1}, E3, {z, 0, 0.04}];

CÓDIGOS PARA GRAFICAR:

Plot[I3, {z, 0, 0.04}, PlotStyle -> {Black, Thickness[0.005]},

```

AxesLabel -> {Style[HoldForm[z "[" cm "]], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"),
    FontSize -> 14]}}

Plot3D[I38, {\[Eta]8, 1.2, 1.5}, {z, 0, 0.04}, PlotRange -> All,
AxesLabel -> {Style[
  HoldForm[\[Eta] "(\!\(\(*SubscriptBox[\(\[Omega]\), \((3\))\)\))" ],
  FontSize -> 14], Style[HoldForm[z], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"),
    FontSize -> 14]}, ColorFunction -> ColorData["BlueGreenYellow"]]

Plot3D[I3, {E1, 0, 80}, {z, 0, 0.04}, PlotRange -> All,
AxesLabel -> {Style[HoldForm[Subscript["E", 1] ], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm[z], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"),
    FontSize -> 14]}, ColorFunction -> ColorData["BlueGreenYellow"]]

Plot3D[I3, {ET21, 0, 20}, {z, 0, 0.04}, PlotRange -> All,
AxesLabel -> {Style[HoldForm[Subscript["E", 2] ], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm[z], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"),
    FontSize -> 14]}, ColorFunction -> ColorData["BlueGreenYellow"]]

Plot3D[I3, {a, 0, 1}, {z, 0, 0.04}, PlotRange -> All,
AxesLabel -> {Style[
  HoldForm[
    "\[Alpha]" "(\!\(\(*SubscriptBox[\(\[Omega]\), \((3\))\)\))" ],
    FontSize -> 14], Style[HoldForm[z], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"),
    FontSize -> 14]}, ColorFunction -> ColorData["BlueGreenYellow"]]

Plot3D[I3/10, {ST21, 0.01, 0.3}, {z, 0, 0.04}, PlotRange -> All,
AxesLabel -> {Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(S\), \((0\))\)\]"),
  FontSize -> 14], Style[HoldForm[z], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"),
    FontSize -> 14]}, ColorFunction -> ColorData["BlueGreenYellow"]]

```

```
Plot[3500*(Evaluate[E3 [z]*Conjugate[E3 [z]] - 0.02 /. %]), {z, 0,
  0.04}, PlotStyle -> {Black, Thickness[0.005]},
AxesLabel -> {Style[HoldForm[z "[" cm ""]], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"),
  FontSize -> 14]}]
```

CÓDIGOS PARA GRAFICAR LOS TRES CASOS DE PROPAGACIÓN CON DISTINTO VALOR DEL PARÁMETRO DE SATURACIÓN

```
s = NDSolve[{E3''[z] + \[Phi]1* E3'[z] + \[Phi]2*E3[z] == 0,
  E3[0] == 0.1 + I 0.1, E3'[0] == 0.1 + I 0.1}, E3, {z, 0, 0.04}];
Plot[{I32*10^10*1.4, I31*0.17,
  800*(Evaluate[E3 [z]*Conjugate[E3 [z]] - 0.02 /. %])}, {z, 0, 0.04},
  PlotStyle -> {Black, Black, Black, Thickness[0.0065]},
AxesLabel -> {Style[HoldForm[z "[" cm ""]], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"), FontSize -> 14]}]
```

```
Plot[{I32*10^10, I31*0.045,
  750*(Evaluate[E3 [z]*Conjugate[E3 [z]] - 0.02 /. %])}, {z, 0, 0.04},
  PlotStyle -> {Black, Black, Black, Thickness[0.0065]},
AxesLabel -> {Style[HoldForm[z "[" cm ""]], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"), FontSize -> 14]}]
```

```
Plot[{I32*10^10*5, I31*0.85,
  100*(Evaluate[E3 [z]*Conjugate[E3 [z]] - 0.02 /. %])}, {z, 0, 0.04},
  PlotStyle -> {Black, Black, Black, Thickness[0.0065]},
AxesLabel -> {Style[HoldForm[z "[" cm ""]], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))\)\]"), FontSize -> 14]}]
```

CÓDIGOS PARA GRAFICAR LOS TRES CASOS DE PROPAGACIÓN CON TOLERANCIA $\pm 10\%$

```
Plot[{I32*10^10, I31*0.045,
  750*(Evaluate[E3 [z]*Conjugate[E3[z]] - 0.02 /. %]),
  0.8*750*(Evaluate[E3[z]*Conjugate[E3[z]] - 0.02 /. %]),
  1.2*750*(Evaluate[E3[z]*Conjugate[E3 [z]] - 0.02 /. %])}, {z, 0,
  0.04}, PlotRange -> Full, ColorFunction -> {Black, Black, Black},
```

```

PlotStyle -> {Black, Black, Black, Dashed, Dashed},
AxesLabel -> {Style[HoldForm[z "[" cm ""]], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))]\)\)], FontSize -> 14]}]

```

```

Plot[{I32*10^10, I31*0.045,
  3800*(Evaluate[E3 [z]*Conjugate[E3[z]] - 0.02 /. %]),
  0.9*3800*(Evaluate[E3[z]*Conjugate[E3[z]] - 0.02 /. %]),
  1.1*3800*(Evaluate[E3[z]*Conjugate[E3 [z]] - 0.02 /. %])}, {z, 0,
  0.04}, PlotRange -> Full, ColorFunction -> {Black, Black, Black},
PlotStyle -> {Black, Black, Black, Dashed, Dashed},
AxesLabel -> {Style[HoldForm[z "[" cm ""]], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))]\)\)], FontSize -> 14]}]

```

```

Plot[{I32*10^10*0.7, I31*0.02,
  1400*(Evaluate[E3 [z]*Conjugate[E3[z]] - 0.02 /. %]),
  0.9*1400*(Evaluate[E3[z]*Conjugate[E3[z]] - 0.02 /. %]),
  1.1*1400*(Evaluate[E3[z]*Conjugate[E3 [z]] - 0.02 /. %])}, {z, 0,
  0.04}, PlotRange -> Full, ColorFunction -> {Black, Black, Black},
PlotStyle -> {Black, Black, Black, Dashed, Dashed},
AxesLabel -> {Style[HoldForm[z "[" cm ""]], FontSize -> 14],
  Style[HoldForm["!\(\(*SubscriptBox[\(I\), \((3\))]\)\)],
  FontSize -> 14]}]

```

Bibliografía.

- [1] R. Boyd, *Nonlinear Optics*, 3rd. ed., Academic press, USA (2008).
- [2] Y. R. Shen, *The principles of nonlinear optics*, John Wiley & Sons, USA (1984).
- [3] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich, Generation of Optical Harmonics, *Phys. Rev. Lett.*, **7**, 118 (1961).
- [4] S. Parker, *Optics source book*, 6th. ed., Mc. Graw Hill, USA (1988).
- [5] P. Meystre, and M. Sargent III, *Elements of Quantum Optics*, 3rd. ed., Springer, USA (1990).
- [6] A. Yariv, *Quantum Electronics*, 3rd. ed., John Wiley & Sons, USA (1989).
- [7] K. Blum, *Density Matrix Theory and Applications*, 3rd. ed., Plenum Press, USA (1981).
- [8] H. J. Eichler, P. Gunter, and D.W. Pohl, *Laser induced Dynamic gratings*, Springer-Verlag, Germany (1986).
- [9] S. Melle, O. G. Calderón, Z. C. Zhuo, M. A. Antón, and F. Carreño, Dynamic population gratings in highly doped erbium fibers, *J. Opt. Soc. Am. B*, **28**, 1631 (2011).
- [10] E.J. Brown, Q. Zhang, and M. Dantus, Femtosecond transient-grating techniques: Population and coherence dynamics involving ground and excited states, *J. Chem. Phys.*, **110**, 5772 (1999).
- [11] F. Arrieta-Yáñez, O. G. Calderón and S. Melle, Slow and fast light based on coherent population oscillations in erbium-doped fibres, *J. Opt.*, **12**, 104002 (2010).

-
- [12] J. L. Paz, M. Izquierdo, L. G. Rodríguez and C. Costa-Vera, Propagación de la señal de Mezcla de cuatro ondas en un sistema molecular: Consideraciones estocásticas del baño térmico, *OPA*, **48**, 225 (2015).
- [13] J. L. Paz, A. Mastrodomenico, C. Costa-Vera, J. Cárdenas-García and L. G. Rodríguez, Rotating wave approximation effects on the nonlinear optical responses of complex molecular systems using a four-wave mixing signal, *J. Mod. Opt.*, **62**, 403 (2015).
- [14] J. L. Paz, and A. Mendoza-García, Solvent influence on the nonlinear optical properties of molecular systems in the presence of degenerate and non-degenerate four-wave mixing, *J. Mod. Opt.*, **59**, 71 (2012).
- [15] T. Kobayashi, *Nonlinear Optics of Organics and Semiconductors*, Springer-Verlag, Germany (1989).
- [16] H. S. Nalwa and S. Miyata, *Nonlinear Optics of Organic Molecules and Polymers*, CRC Press, USA (1997).
- [17] J. Zyss, *Molecular Nonlinear Optics: Materials, Physics, and Devices*, Academic Press, USA (1994).
- [18] R. L. Sutherland, *Handbook of Nonlinear Optics*, 2nd. ed., Marcel Dekker, USA (2003).
- [19] Y. Guo, C. K. Kao, E. H. Li, K. S. Chang, *Nonlinear Photonics: Nonlinearities in Optics, Optoelectronics and Fiber Communications*, Springer-Verlag, Germany (2002).
- [20] P. Günter, *Nonlinear Optical Effects and Materials*, Springer-Verlag, Germany (2000).
- [21] I. A.-D. H. A. Al-Saidi, S. A.-D. Abdulkareem, Nonlinear optical properties and optical power limiting effect of Giemsa dye, *J. Opt. Laser Technol.*, **82**, 150 (2016).
- [22] R. Boyd and G. L. Fischer, *Nonlinear Optical Materials*, Encyclopedia of Materials: Science and Technology, USA (2001).
- [23] F. Bonaccorso, Z. Sun, T. Hasan and A. Ferrari, Graphene photonics and optoelectronics, *Nature Photon.*, **4**, 611 (2010).
- [24] L. A. Falkovsky, Optical properties of graphene, *J. Phys.*, **129**, 1742 (2008).
-

-
- [25] J. L. Cheng, N. Vermeulen and J. E. Sipe, Third order optical nonlinearity of graphene, *New J. Phys.*, **16**, 1367 (2014).
- [26] L. M. Malard, K. F. Mak, A. H. Castro Neto, N. M. R. Peres, T. F. Heinz, Observation of intra- and inter-band transitions in the transient optical response of graphene, *New J. Phys.*, **15**, 015009 (2013).
- [27] B. J. Eggleton, B. Luther-Davies, and K. Richardson, Chalcogenide photonics, *Nature Photon.*, **5**, 141 (2011).
- [28] S. D. Le, D. M. Nguyen, M. Thual, L. Bramerie, M. Costa e Silva, K. Lenglé, M. Gay, Th. Chartier, L. Brilland, D. Méchin, P. Toupin and J. Troles, Efficient Four-Wave Mixing in a Ultra-Highly Nonlinear Suspended-Core Chalcogenide Fiber, in 37th European Conference and Exposition on Optical Communications OSA Technical Digest, (2011).
- [29] X. Li, L. Zou, C. Liu, Z.-H. Zhang and J.-H. Yuan, The nonlinear optical rectification and second harmonic generation in asymmetrical Gaussian potential quantum well: Effects of hydrostatic pressure, temperature and magnetic field, *Opt. Mater.*, **53**, 218 (2016).
- [30] S. R. Petersen, T. T. Alkeskjold and J. Lægsgaard, Degenerate four wave mixing in large mode area hybrid photonic crystal fibers, *Opt. Express*, **21**, 18111 (2013).
- [31] L. S. Rishøj, P. E. Steinvurzel, Y. Chen, L. Yan, J. D. Demas, M. D. W. Grogan, T. Ellenbogen, K. Crozier, K. Rottwitt and S. Ramachandran, High-Energy Four-Wave Mixing, with Large-Mode-Area Higher-Order Modes in Optical Fibres, in 38th European Conference and Exhibition on Optical (2012).
- [32] O. Y. Khyzhun, V. L. Bekenev, O. V. Parasyuk, S. P. Danylchuk, N. M. Denysyuk, A. O. Fedorchuk, N. AlZayed and I. V. Kityk, Single crystal growth and the electronic structure of orthorhombic Tl_3PbBr_5 : A novel material for nonlinear optics, *Opt. Mater.*, **35**, 1081 (2013).
- [33] K. Thirupugalmani, S. Karthick, G. Shanmugam, V. Kannan, B. Sridhar, K. Nehru and S. Brahadeeswaran, Second- and third-order nonlinear optical and quantum chemical studies on 2-amino-4-picolinium-nitrophenolate-nitrophenol: A phasematchable organic single crystal, *Opt. Mater.*, **49**, 158 (2015).
- [34] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloe, Quantum Mechanics. Vol. 2., John Wiley & Sons, USA (1991).
-

-
- [35] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions: Basic Processes and Applications*, John Wiley & Sons, USA (1998).
- [36] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloe, *Quantum Mechanics. Vol. 1.*, John Wiley & Sons, USA (1991).
- [37] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*, 7th. ed., Cambridge University Press, (1999).
- [38] D. J. Griffiths, *Introduction to Electrodynamics*, 3rd ed., Addison-Wesley, USA (1999).
- [39] B. D' Espagnat, *Conceptual Foundations of Quantum Mechanics*, Addison-Wesley, USA (1976).
- [40] U. Fano, Description of States in Quantum Mechanics by Density Matrix and Operator Techniques, *Rev. Mod. Phys.*, **29**, 74 (1957).
- [41] E. Cabrera-Granado, E. Díaz, and O. G. Calderón, Slow Light in Molecular-Aggregate Nanofilms, *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 013901 (2011).
- [42] S. Frisken, Transient Bragg reflection gratings in erbium-doped fiber amplifiers, *Opt. Lett.*, **17**, 1776 (1992).
- [43] B. Fischer, J. L. Zyskind, J. W. Sulhoff, and D. J. DiGiovanni, Nonlinear wave mixing and induced gratings in erbium-doped fiber amplifiers, *Opt. Lett.*, **18**, 2108 (1993).
- [44] G.-L. Cheng, L. Cong and A.-X. Chen, Two-dimensional electromagnetically induced grating via gain and phase modulation in a two-level system, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **49**, 085501 (2016).
- [45] S. A. Carvalho and L. E. E. de Araujo, Electromagnetically induced grating with maximal atomic coherence, *Phys. Rev. A* , **84**, 043850 (2011).
- [46] P.J. Colmenares, R. Almeida and J. L. Paz, Stochastic effects of the solvent on the absorptive and dispersive processes in a two-level system up to first order in the external field, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **28**, 4377 (1995).