

GENERACION DE ULTRAVIOLETA EN SISTEMAS ATOMICOS BOMBEADOS POR UNA TRANSICION DE DOS FOTONES.*

por

Angela María Guzmán-Hernández**

Resumen

Guzmán-Hernández, A.M.: Generación de ultravioleta en sistemas atómicos bombeados por una transición de dos fotones. Rev. Acad. Colomb. Cienc. 17 (66): 567-577, 1990. ISSN 0370-3908.

Se considera un medio no lineal bombeado por un láser de frecuencia γ_1 cuasi-resonante con una transición de dos fotones en el que se genera radiación coherente de frecuencia γ_2 por dispersión Hiper-Raman estimulada. Mediante el análisis semiclásico de la dinámica de un sistema atómico de cuatro niveles se discute la generación de la suma y diferencia de frecuencias $2\gamma_1 \pm \gamma_2$ por mezcla de cuatro ondas. Se estudia la propagación de ondas en el medio en el estado estacionario teniendo en cuenta desajustes de fase y se realiza una comparación cualitativa con resultados experimentales en Cd.

Se muestra que la generación de la suma puede ser un proceso más eficiente que la generación de la diferencia en caso de existir ajuste de fase perfecto. Para lograr este ajuste de fase debe considerarse la variación del índice de refracción del medio en la región de saturación del campo Hiper-Raman.

I. Introducción

Hasta hace pocas décadas la mayoría de los efectos ópticos observables podían atribuirse a procesos de interacción materia-radiación que a nivel microscópico involucran la emisión o absorción de un sólo fotón por un átomo o un electrón. Tal es el origen de fenómenos como la refracción, dispersión, absorción, el efecto fotoeléctrico, etc., procesos que son prácticamente los únicos observables con fuentes incoherentes, debido a que el flujo de fotones no es suficiente para que sea apreciable la probabilidad de que más de un fotón incida sobre un átomo durante el tiempo de interacción.

La absorción simultánea de dos fotones por un átomo fue predicha por Marie Göppert-Mayer (1) en 1931 en su tesis de grado sobre teoría de perturbaciones de segundo orden. Sin embargo, a las intensidades de las fuentes de luz disponibles en la época, el proceso era demasiado poco probable para ser observable. Habría que esperar tres décadas, hasta la aparición del láser, para observar la gran variedad de procesos multifotónicos que conocemos hoy.

Con el láser nació por consiguiente también un nuevo campo de la óptica: la óptica no lineal, que estudia fenómenos característicos de la interacción de la materia con radiación de alta intensidad. Su desarrollo ha sido paralelo con la Física del Láser y ha hecho posible extender cada vez más el rango espectral cubierto por radiación coherente. En el mismo año en que Maiman (2) pusiera en funcionamiento el láser de Rubí, Franken et al. (3), doblaron su frecuencia en un cristal de cuarzo. Su trabajo motivó durante una década la búsqueda de cris-

* Trabajo ganador del Premio Academia de Ciencias del Tercer Mundo, Convocatoria 1988. Area de Física.

** Departamento de Física Universidad Nacional de Colombia, Bogotá, D.E.

tales adecuados para incrementar la eficiencia de la generación del segundo armónico, hasta constituir-la en una técnica estándar.

Los efectos no lineales en gases parecían, en primera instancia, mucho más difíciles de observar: para medios isotrópicos, con simetría de inversión, efectos de segundo orden son prohibidos dentro de la aproximación dipolar no relativista*. A finales de la década de los sesenta New y Ward (6) obtuvieron por primera vez un efecto de tercer orden en un gas: la generación del tercer armónico del láser de rubí en una celda de vapor. Aunque las susceptibilidades no lineales son en general mucho menores para gases que para líquidos o sólidos, el uso de un gas como medio no lineal ofrece la posibilidad de aumentar la intensidad incidente mediante una mayor focalización del haz, sin el peligro de rotura que aqueja a los cristales: aún en caso de descarga eléctrica, el material no se destruye. Además, a diferencia de los cristales, muchos gases son transparentes en la región espectral del ultravioleta de vacío (VUV) $\lambda_{\text{VUV}} = 100\text{-}200$ nm.

La eficiencia de generación de armónicos (y de otros fenómenos no lineales) en un medio depende, sin embargo, fuertemente del desajuste de fase debido a las diferentes velocidades de propagación de la frecuencia fundamental y de su armónico. En cristales birrefringentes el ajuste de fase se logra con el rayo extraordinario. En gases existe la posibilidad de obtener ajuste de fase no colineal mediante una focalización adecuada del haz incidente*; pero en celdas de vapor el método más utilizado es el propuesto por Harris y Miles (8), consistente en mezclar el gas activo con un gas que cambia las propiedades dispersivas del medio a la frecuencia de interés, denominado "buffer gas". Para ondas planas la proporción de los gases debe ser tal que el índice de refracción de la mezcla sea el mismo para la frecuencia fundamental y para el armónico, es decir, tal que el desajuste de fase sea nulo; para haces focalizados, según cálculos realizados por Bjorklund (9), la generación del tercer armónico y de la suma de frecuencias es posible sólo si el desajuste de fase es negativo**, y su valor óptimo depende del grado de focalización del haz.

* Tales efectos han sido observados pero su origen no ha sido claramente establecido. Ninguno de los modelos teóricos propuestos, incluso el más ampliamente aceptado (4), ha podido predecir correctamente las dependencias observadas experimentalmente. Para mayor información ver (5) y las referencias allí citadas.

* Este tipo de ajuste de fase se utiliza actualmente para generar radiación en el ultravioleta extremo en jets de Kr, evitando así, la fuerte absorción que tendría lugar en celdas de vapor (7).

** Con la convención de Bjorklund (9) un desajuste de fase negativo se obtiene cuando el índice de refracción para la frecuencia fundamental es mayor que para el armónico, lo que requiere el uso de gases negativamente dispersivos entre la longitud de onda fundamental y del armónico.

El trabajo pionero en la búsqueda de radiación sintonizable en el VUV y el ultravioleta extremo (XUV), $\lambda_{\text{XUV}} < 100$ nm, fue también realizado por Harris y colaboradores. Mediante generación de segundo armónico y suma de frecuencias en cristales obtuvieron a partir de un láser de Nd: YAG, radiación de 355 nm. En una mezcla de gases Cd: Ar, en proporciones adecuadas para lograr ajuste de fase, se produjo la suma del doble de la frecuencia de esta radiación con la frecuencia fundamental (1.06 m) del láser de Nd: YAG (10). Mediante la generación de tercer armónico en mezcla Xe: Ar (11) y en Ar (12) se obtuvo radiación VUV sintonizable en pulsos de 20 nseg. y con potencia pico de ~ 1 W.

Por la misma época Hodgson y colaboradores (13) introdujeron un nuevo método para obtener radiación coherente y de gran sintonizabilidad en el VUV. En una celda de Sr se enfocaron dos láseres de colorante de frecuencias ν_1 y ν_2 . El primero fue sintonizado en resonancia con una transición de dos fotones, y el segundo de modo que $2\nu_1 + \nu_2$ alcanzara la región de ionización. En estas condiciones, la sintonizabilidad de ν_2 determina la del campo de frecuencia $\nu_4 = 2\nu_1 + \nu_2$ generado como suma de frecuencias por mezcla de cuatro ondas (4-WSM). Los gases más utilizados con este propósito son los gases nobles y los vapores metálicos, que ofrecen mayor eficiencia cuando ν_4 coincide con un estado autoionizante embebido en el continuo.

En la actualidad, la mezcla no lineal de frecuencias en gases es un método bien establecido para la generación de radiación coherente y sintonizable en las regiones espectrales del ultravioleta (UV),

$\lambda_{\text{UV}} = 200\text{-}400$ nm, $\text{VUV}^{[14-17]}$ y $\text{XUV}^{[16,17]}$ El fundamento teórico de estos efectos no lineales dentro de la teoría de perturbaciones lo constituyen los trabajos de Armstrong, Bloembergen, Ducuing, Pershan (18) y Bjorklund (9), quienes encontraron expresiones para las susceptibilidades no lineales de la función de desajuste de fase respectivamente. Mediante el formalismo de la matriz densidad (19) se han discutido los efectos de la saturación de la transición de dos fotones, los corrimientos Stark, la fotoionización y el cambio de índices de refracción en el medio debido a la redistribución de poblaciones. Algunos autores han sugerido que debido a estos efectos la eficiencia de conversión para bombeo resonante difícilmente excede la obtenida con bombeo lejos de resonancia (20). Existen varios artículos de revisión sobre los principios básicos del método y los avances experimentales logrados (17, 21, 22) a los que el lector es referido para mayores detalles.

El objetivo de este trabajo es analizar teóricamente la generación por mezcla de cuatro ondas de la suma $\nu_4 = 2\nu_1 + \nu_2$ (4-WSM) y la diferencia $\nu_3 = 2\nu_1 - \nu_2$ (4-WDM), del doble de la frecuencia ν_1 de un láser de bombeo (ver Fig. 1) con la frecuencia ν_2 del campo generado en el medio por dispersión hiper-

Raman*. La generación de la diferencia ν_3 no está sujeta a ajuste de fase en la dirección del haz incidente y ha sido observada fácilmente (17, 24, 28). Análisis teóricos de este fenómeno, realizados dentro de la aproximación semiclásica (27), dan buena cuenta de sus características generales; sin embargo, en experimentos recientes (29) se ha observado que la generación de la diferencia es atenuada cuando la suma $2\nu_1 + \nu_2$ corresponde a una de las frecuencias de transición a un estado Rydberg.

El estudio de los dos fenómenos mencionados y de efectos competitivos entre ellos requiere del análisis de la dinámica de un sistema atómico de cuatro niveles activos (Ver Fig. 1), en interacción con cuatro campos, a saber: el láser de bombeo, el campo hiper-Raman y los campos generados por 4-WDM y 4-WSM. Dado que el campo hiper-Raman se amplifica a lo largo del medio no lineal, la polarización fuente de 4-WSM varía con la coordenada del amplificador; por consiguiente cálculos basados en el tratamiento perturbativo (9, 18), no permiten predecir correctamente las eficiencias de conversión. En la sección II se plantean las ecuaciones dinámicas del sistema atómico en interacción con el campo electromagnético total dentro de la aproximación semiclásica. En la Sección III se obtienen las ecuaciones de propagación de los campos dentro de la aproximación de amplitudes y fases lentamente variables.

En la sección IV se estudia la amplificación de los campos en la región de campo hiper-Raman débil y se obtienen expresiones analíticas para la ganancia de los diferentes procesos en el amplificador, incluyendo desajustes de fase.

Los efectos de saturación en la transición de dos fotones, la fotoionización y la absorción del haz incidente y de la radiación generada han sido discutidos en la literatura (19, 20). Sin embargo, el efecto de la fluorescencia y/o la inversión de población generada entre el nivel $|2\rangle$ (Fig. 1) y un nivel intermedio energéticamente inferior ha sido despreciado para polarizaciones no lineales inducidas completamente por campos externos (19). En un amplificador como el aquí considerado, la saturación de la radiación hiper-Raman conlleva una distribución de poblaciones diferentes incluso de la correspondiente a la saturación de la transición de dos fotones. El régimen de campo hiper-Raman fuerte es discutido en la Sección V. Se estudia la dependencia de los procesos considerados con la densidad del vapor activo y la potencia del haz incidente; se analiza el efecto del desajuste de fase y se presentan curvas de sintonizabilidad de la radiación generada en condiciones de ajuste de la fase mediante mezcla con

un "buffer gas". La Sección VI contiene discusión de los resultados y comparación con datos experimentales y la Sección VII las conclusiones generales.

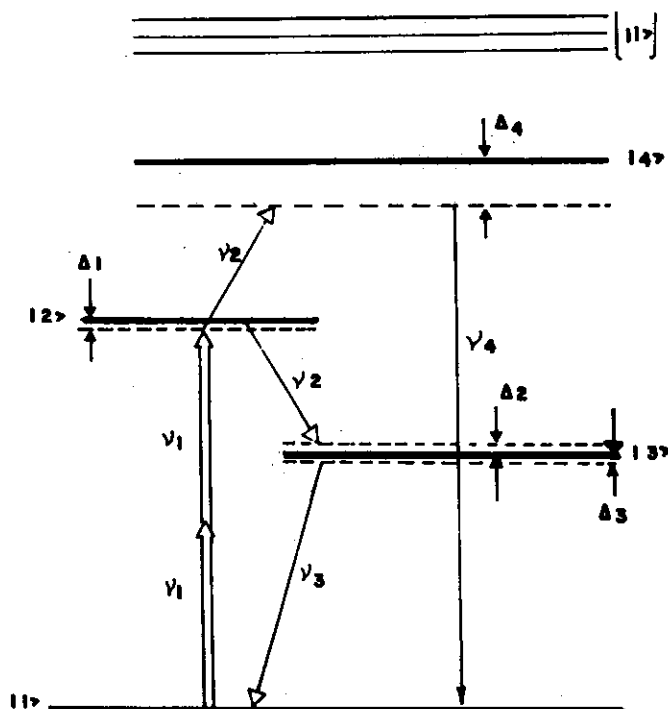


Figura 1. Diagrama de niveles activos indicando los diferentes fenómenos no lineales de interés.

II. Teoría semiclásica:

Cuando efectos de naturaleza puramente cuántica del campo, como la emisión espontánea, no son determinantes de la dinámica del sistema, el análisis de la interacción de sistemas atómicos con la radiación electromagnética puede ser efectuado semiclásicamente considerando el campo como una onda clásica que satisface las ecuaciones de Maxwell. En ausencia de campo electromagnético, un sistema atómico aislado está caracterizado por un conjunto de estados propios del hamiltoniano atómico H_a que satisfacen una ecuación de Schrödinger independiente del tiempo. El campo electromagnético produce transiciones entre estos estados, e incluso corrimientos y desdoblamiento dinámicos de ellos (30).

Cuando el campo electromagnético es monocromático y cuasi-resonante con una transición atómica, la descripción teórica del sistema átomo-campo puede simplificarse notablemente considerando solamente los dos estados atómicos acoplados cuasi-resonantemente por el campo. La interacción de tales "átomos de dos niveles" con campos electromagnéticos ha sido ampliamente estudiada (ver. p. ej. 31).

La descripción teórica no perturbativa de los fenómenos objeto de investigación en este trabajo, requiere considerar un sistema atómico con cuatro niveles activos y un conjunto de estados intermedios $\{|1\rangle\}$ que, conjuntamente con el estado $|3\rangle$, de-

* Fenómeno no lineal en que dos fotones del campo incidente son absorbidos con la emisión simultánea de un fotón de menor energía. La dispersión hiper-Raman ha sido estudiada en detalle tanto teórica como experimentalmente (23-27) y, por su gran eficiencia de conversión, ha sido considerada como una posible fuente de radiación coherente sintonizable en el infrarrojo (23).

terminan la probabilidad de la transición de dos fotones (1, 32, 33) (Ver Fig. 1). El campo electromagnético en el medio es la superposición del campo láser incidente con el campo hiper-Raman y los campos generados por mezcla de cuatro ondas. Por sencillez se considerarán los campos como ondas planas linealmente polarizadas a lo largo de la dirección u y propagándose en la dirección z . El campo eléctrico total está dado por:

$$\mathbf{E}(z, t) = 1/2u \sum_{\alpha=1}^4 (\mathbf{E}_{\alpha}(z, t) \exp(i\mathbf{k}_{\alpha}z - i\nu_{\alpha}t) + \text{c.c.}) \quad (1)$$

donde $\mathbf{k}_{\alpha} = k_{\alpha}z$, $\alpha = 1, 2, 3, 4$, son los vectores de onda de los diferentes campos en el medio, y ν_{α} su frecuencia angular*. Las amplitudes complejas $\mathbf{E}_{\alpha}(z, t)$ se consideran lentamente variables durante un período y a lo largo de una longitud de onda.

El Hamiltoniano del sistema atómico sujeto a interacción con el campo está dado en la aproximación dipolar eléctrica por:

$$H = H_a + U \quad (2)$$

donde $U = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(z, t)$ representa el hamiltoniano de interacción y $\mathbf{d} = -e\mathbf{r}$ es el operador momento dipolar eléctrico atómico.

La matriz densidad evoluciona de acuerdo con la ecuación

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -i/\hbar [H, \rho] + \dot{\rho}_R \quad (3)$$

donde $\dot{\rho}_R$ ha sido introducido fenomenológicamente para simular el efecto de procesos de relajación tales como emisión espontánea y relajación de fase o transferencia de población por colisiones.

Siguiendo el método empleado en (27), los elementos de la matriz o pueden expandirse en serie de Fourier según:

$$\rho_{mj}(z, t) = \sum_{\text{KNLM}} \sigma_{mj}^{\text{KNLM}} \exp(i\nu_{\text{KNLM}}t - ik_{\text{KNLM}}z) \quad (4)$$

donde $\sigma_{mj}^{\text{KNLM}}$ son amplitudes lentamente variables de términos rápidamente oscilantes con frecuencias $\nu_{\text{KNLM}} = K\nu_1 + N\nu_2 + L\nu_3 + M\nu_4$ y de rápida dependencia espacial determinada por $k_{\text{KNLM}} = Kk_1 + Nk_2 + Lk_3 + Mk_4$.

Para cada elemento matricial ρ_{mj} hay una amplitud resonante $\sigma_{mj}^{\text{KNLM}}$ tal que si $\hbar\omega_{mj}$ es la diferencia de energía entre los estados $|m\rangle$ y $|j\rangle$, se satisface:

$$\omega_{mj} + \nu_{\text{KNLM}} = 0 \quad (5)$$

Conservando sólo los términos de primer orden en $\xi_{\alpha}, \alpha=2, 3, 4$, se obtienen ecuaciones para las amplitudes $\sigma_{mj}^{\text{KNLM}}$, que describen la evolución de poblaciones ($m=j$) y elementos matriciales no diagonales cuasiresonantes ($m \neq j$) (por simplicidad omitimos los supraindices KNLM que están determinados por la relación (5)):

$$\begin{aligned} \dot{\sigma}_{21} &= -(\Gamma_{21} + i\Delta_1 + i\delta_{21})\sigma_{21} + i\nu_{21}(\sigma_{22} - \sigma_{11}) \\ &\quad + \sum_{\alpha=3,4} (i\sigma_{2\alpha}\nu_{\alpha 1} - i\nu_{2\alpha}\sigma_{\alpha 1}) \exp(i\phi_{\alpha}z) \\ \dot{\sigma}_{23} &= -(\Gamma_{23} + i\Delta_2 + i\delta_{23})\sigma_{23} + i\nu_{23}(\sigma_{22} - \sigma_{33}) - i\sigma_{43}\nu_{24} \\ &\quad + (i\sigma_{21}\nu_{13} - i\nu_{21}\sigma_{13}) \exp(i\phi_3z) \\ \dot{\sigma}_{13} &= -(\Gamma_{13} - i\Delta_3 + i\delta_{13})\sigma_{13} - i\nu_{13}(\sigma_{33} - \sigma_{11}) \\ &\quad - i\sigma_{43}\nu_{14} \exp(-i\phi_2z) + i\sigma_{12}\nu_{23} - i\nu_{12}\sigma_{23} \exp(i\phi_3z) \\ \dot{\sigma}_{24} &= -(\Gamma_{24} + i\Delta_1 - i\Delta_4 + i\delta_{24})\sigma_{24} + i\nu_{24}(\sigma_{22} - \sigma_{44}) - i\sigma_{34}\nu_{23} \\ &\quad + (i\sigma_{21}\nu_{14} - i\nu_{21}\sigma_{14}) \exp(i\phi_4z) \\ \dot{\sigma}_{14} &= -(\Gamma_{14} - i\Delta_4 + i\delta_{14})\sigma_{14} - i\nu_{14}(\sigma_{44} - \sigma_{11}) \\ &\quad - i\sigma_{34}\nu_{13} \exp(i\phi_2z) + (i\sigma_{12}\nu_{24} - i\nu_{12}\sigma_{24}) \exp(i\phi_4z) \\ \dot{\sigma}_{34} &= -(\Gamma_{34} - i\Delta_4 + i\Delta_3 + i\delta_{34})\sigma_{34} + (i\sigma_{32}\nu_{24} - i\nu_{32}\sigma_{24}) \\ &\quad + (i\sigma_{31}\nu_{14} - i\nu_{31}\sigma_{14}) \exp(-i\phi_2z) \\ \dot{\sigma}_{11} &= \Gamma_3\sigma_{33} + (i\sigma_{12}\nu_{21} + i\nu_{31}\sigma_{13} + \text{c.c.}) \\ \dot{\sigma}_{22} &= -\Gamma_2\sigma_{22} - (i\sigma_{12}\nu_{21} + i\nu_{23}\sigma_{32} + \text{c.c.}) \\ \dot{\sigma}_{33} &= -\Gamma_3\sigma_{33} + \Gamma_2\sigma_{22} + (i\sigma_{32}\nu_{23} + i\nu_{13}\sigma_{31} + \text{c.c.}) \\ \sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33} + \sigma_{44} &= 1 \end{aligned} \quad (6)$$

Los factores Γ_j , $j=2, 3, 4$, representan las tasas de depoblación de los niveles $|2\rangle$, $|3\rangle$ y $|4\rangle$ respectivamente y Γ_{mj} , con $m \neq j$, las tasas de relajación de fase debida a colisiones elásticas. Las desintonizaciones de los campos de las frecuencias atómicas ω_{mj} están definidas como sigue:

$$\Delta_1 = \omega_{21} - 2\nu_1, \quad \Delta_2 = \omega_{23} - \nu_2, \quad \Delta_3 = \omega_{31} - \nu_3, \quad \Delta_4 = \omega_{41} - \nu_4 \quad (7)$$

Por conservación de energía $2\nu_1 + \nu_2 = \nu_4$ y $\Delta_1 = \Delta_2 + \Delta_3$. Los corrimientos Stark dinámicos de los niveles $m, k = 1, 2, 3, 4$, con $m, \delta_{mk} =: \delta_m - \delta_k$, son proporcionales a la intensidad del campo láser incidente y están dados por:

$$\delta_m = -\frac{1}{2\hbar^2} \sum_j \frac{|d_{mj}|^2 \omega_{jm}}{\omega_{jm}^2 - \nu_j^2} |E_1|^2 \quad (8)$$

* El símbolo ν_{α} será empleado para designar la frecuencia angular de los campos y ω_{ij} designará las frecuencias angulares de transiciones atómicas.

donde la suma sobre j incluye además de los cuatro niveles activos, el conjunto $\{|i\rangle\}$ de niveles intermedios para la transición de dos fotones. Los elementos matriciales reducidos del hamiltoniano de interacción están dados por:

$$v_{23} = -d_{23} \bar{E}_2 / 2\hbar, \quad v_{31} = -d_{31} \bar{E}_3 / 2\hbar, \quad v_{42} = -d_{24} \bar{E}_2 / 2\hbar, \quad v_{41} = -d_{41} \bar{E}_4 / 2\hbar, \\ \text{y } v_{21} = k_{21} \bar{E}_1^2 / 2\hbar, \text{ con } k_{21} = 1/2\hbar \sum_j d_{2j} d_{j1} / (\omega_{2j} - \nu_1) \quad (9)$$

Los desajustes de fase en los distintos procesos de mezcla de cuatro ondas que toman lugar en el sistema están representados por $\phi_2 = k_4 - 2k_2 - k_3$, $\phi_3 = k_3 + k_2 - 2k_1$ y $\phi_4 = k_{41} - k_2 - 2k_1$.

III. Ecuaciones de propagación de los campos en el medio

La propagación de campos electromagnéticos en medios dieléctricos homogéneos está descrita por la ecuación de onda:

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (10)$$

La polarización \mathbf{P} del medio, generada por el campo \mathbf{E} es fuente de campo en la ecuación (10) y puede expresarse en forma análoga a la ecuación (1) como una superposición de ondas cuasi-monocromáticas:

$$\mathbf{P}(z, t) = \sum_{\alpha=1}^4 1/2u \mathcal{P}_{\alpha}(z, t) \exp(ik_{\alpha}z - i\nu_{\alpha}t) + \text{c.c.} \quad (11)$$

donde $\mathcal{P}_{\alpha}(z, t)$ son amplitudes complejas.

Llevando (1) y (11) a (10) y suponiendo que las amplitudes y fases de los campos y polarizaciones varían lentamente en un período y una longitud de onda (aproximación de amplitud y fase lentamente variables) se obtiene:

$$\frac{\partial \mathcal{E}_{\alpha}}{\partial z} + \frac{1}{v_{\alpha}} \frac{\partial \mathcal{E}_{\alpha}}{\partial t} = \frac{ik_{\alpha}}{2\epsilon_{\alpha}} \mathcal{P}_{\alpha}^{NL} \quad \alpha=2, 3, 4 \quad (12)$$

donde el término de absorción no resonante ha sido omitido por ser despreciable en comparación con otros términos.

La polarización macroscópica está relacionada con el momento dipolar atómico a través del promedio mecanocuántico:

$$\mathbf{P} = N \text{Tr}(\rho \mathbf{d}) \quad (13)$$

donde N es la densidad atómica, ρ es la matriz densidad atómica y \mathbf{d} el operador momento dipolar

eléctrico atómico. Utilizando esta relación y las ecuaciones (4) y (11) se obtiene:

$$\mathcal{P}_2^{NL} = 2N (d_{32} \sigma_{23} + d_{24} \sigma_{42}) \\ \mathcal{P}_3^{NL} = 2N d_{13} \sigma_{31} \\ \mathcal{P}_4^{NL} = 2N d_{14} \sigma_{41} \quad (14)$$

Las contribuciones de los elementos no resonantes determinan la susceptibilidad lineal y por ende la velocidad de propagación v_{α} de la onda en el medio.

Las ecuaciones (12) forman un conjunto de ecuaciones diferenciales parciales en dos variables, acopladas a través de (14) con las ecuaciones (6). Para el estudio de propagación de pulsos en el medio, el sistema completo debe ser resuelto numéricamente, con gran consumo de tiempo de cálculo. Sin embargo, algunas características de la ganancia para los diversos procesos no lineales pueden ser analizadas en el estado estacionario, esto es, cuando todas las derivadas temporales son nulas. El problema se reduce así a la solución de un sistema de ecuaciones algebraicas para la matriz densidad y un sistema de ecuaciones diferenciales ordinarias para la propagación de los campos en el medio. Esta solución es estrictamente válida para el caso de bombeo con láseres continuos, y aproximada para pulsos de mayor duración que el inverso de las tasas de relajación del sistema.

De (12), (14), y las definiciones (9) de los elementos matriciales reducidos de la interacción, se obtiene para el estado estacionario:

$$\frac{\partial v_{23}}{\partial z} = -i\lambda_2 (\sigma_{23} + \mu \sigma_{42}), \quad \lambda_2 = \frac{k_2 N}{2\hbar \epsilon_2} |d_{23}|^2, \quad \mu = \frac{d_{24}}{d_{23}^*} \\ \frac{\partial v_{31}}{\partial z} = -i\lambda_3 \sigma_{31}, \quad \lambda_3 = \frac{k_3 N}{2\hbar \epsilon_3} |d_{13}|^2 \\ \frac{\partial v_{41}}{\partial z} = -i\lambda_4 \sigma_{41}, \quad \lambda_4 = \frac{k_4 N}{2\hbar \epsilon_4} |d_{14}|^2 \quad (15)$$

Para el láser de bombeo existe una ecuación análoga, pero los factores involucrados son pequeños (27) y puede considerarse que su amplitud permanece constante.

IV. Ganancia para campo Hiper-Raman débil

Debido a la inversión de población creada por el láser de bombeo entre los estados $|2\rangle$ y $|3\rangle$, el campo hiper-Raman es amplificado inicialmente exponencialmente y eventualmente alcanza la saturación al propagarse en el medio. Para muestras de pequeño espesor efectivo, la ganancia hiper-Raman (34, 35) y de la mezcla de cuatro ondas está determinada por la solución de las ecuaciones (6) a primer orden en v_{23} , v_{13} y v_{41} .

Una simplificación adicional puede hacerse considerando que cuando la frecuencia $2\nu_1 + \nu_2$ dista de la resonancia con el nivel $|4\rangle$, la población en ese estado es aproximadamente nula y el efecto del acoplamiento con σ_{34} es despreciable. Resolviendo en el estado estacionario y con estas aproximaciones las ecuaciones (6) se obtiene:

$$\sigma_{2j} = \frac{D_{2j}}{S_1 S_{2j}} (iV_{2j} (\beta_j + D_{21}^* D_{1j} |V_{12}|^2) + V_{1j} V_{21} [D_{21} + D_{1j} (1 + \beta_j)] e^{-i\phi_j z}) \quad (16)$$

$$\sigma_{1j} = \frac{D_{1j}}{S_1 S_{2j}} (iV_{1j} (1 + \beta_j - D_{21} D_{2j} |V_{12}|^2) + V_{12} V_{2j} (D_{2j} \beta_j - D_{21}^*) e^{i\phi_j z}), \quad j = 3, 4$$

donde

$$D_{21} = (\Gamma_{21} + i\Lambda_1 + i\delta_{21})^{-1}$$

$$D_{23} = (\Gamma_{23} + i\Delta_2 + i\delta_{23})^{-1}$$

$$D_{24} = (\Gamma_{24} - i\Lambda_4 + i\Gamma_1 + i\delta_{24})^{-1}$$

$$D_{13} = (\Gamma_{13} - i\Lambda_3 + i\delta_{13})^{-1}$$

$$D_{14} = (\Gamma_{14} + i\Lambda_4 + i\delta_{14})^{-1}$$

$$S_1 = 1 + \mathcal{L}_1^2 I_1^2$$

$$\mathcal{L}_1 = \frac{\Gamma_{21}^2}{\Gamma_{21}^2 + (\Delta_1 + \delta_{21})^2}$$

$$I_1 = 2|V_{21}| \sqrt{(\Gamma_1/\Gamma_{21})}$$

$$\Gamma_1 = 1/2 (2/\Gamma_2 + 1/\Gamma_3)$$

$$S_{2j} = 1 + D_{2j} D_{1j} |V_{21}|^2 \quad (17)$$

$$\beta_3 = (1/\Gamma_2 - 1/\Gamma_3) \mathcal{L}_1 I_1^2 / (2\Gamma_1)$$

$$\beta_4 = \mathcal{L}_1 I_1^2 / (2\Gamma_2 \Gamma_1)$$

Llevando (16) a (15) se obtiene

$$\frac{dv_{23}}{dz} = Av_{23} + Bv_{13} e^{-i\phi_3 z} + Cv_{41} e^{i\phi_4 z}$$

$$\frac{dv_{13}}{dz} = Dv_{13} + Fv_{23} e^{i\phi_3 z} \quad (18)$$

$$\frac{dv_{41}}{dz} = Gv_{41} + Hv_{23} e^{-i\phi_4 z}$$

donde

$$A = \Lambda_2 \left(\frac{D_{23}}{S_1 S_{23}} (\beta_3 + D_{21}^* D_{13} |V_{12}|^2) - |\mu|^2 \frac{D_{24}^* (\beta_4 + D_{21}^* D_{14} |V_{12}|^2)}{S_1 S_{24}^*} \right)$$

$$B = -i \Lambda_2 \frac{D_{23}}{S_1 S_{23}} V_{21} [D_{21} + D_{13} (1 + \beta_3)]$$

$$C = -i \Lambda_2 \mu \frac{D_{24}^*}{S_1 S_{24}^*} V_{12} [D_{21}^* + D_{14}^* (1 + \beta_4)]$$

$$D = -\Lambda_3 \frac{D_{13}}{S_1 S_{23}} (1 + \beta_3 - D_{21} D_{23} |V_{12}|^2) \quad (19)$$

$$F = i \Lambda_3 \frac{D_{13}}{S_1 S_{23}} V_{12} (D_{23} \beta_3 - D_{21}^*)$$

$$G = -\Lambda_4 \frac{D_{14}^*}{S_1 S_{24}^*} (1 + \beta_4 - D_{21}^* D_{24}^* |V_{12}|^2)$$

$$H = -i \Lambda_4 \frac{D_{14}^*}{S_1 S_{24}^*} \mu^* V_{21} (D_{24}^* \beta_4 - D_{21})$$

Introduciendo las nuevas variables

$$v_{13} =: V_{13} \exp(-i\phi_3 z), \quad v_{41} =: V_{41} \exp(i\phi_4 z) \quad (20)$$

las ecuaciones (18) toman la forma:

$$\frac{dV_{23}}{dz} = AV_{23} + BV_{13} + CV_{41} \quad (a)$$

$$\frac{dV_{13}}{dz} = (D - i\phi_3) V_{13} + FV_{23} \quad (b) \quad (21)$$

$$\frac{dV_{41}}{dz} = (G + i\phi_4) V_{41} + HV_{23} \quad (c)$$

La solución analítica del sistema de ecuaciones (21) se obtiene sin mayor complicación mediante la transformada de Laplace. Si el tiempo de vida del estado $|2\rangle$ es mucho mayor que el inverso de las ratas de relajación r_{1j} , el acoplamiento del campo hiper-Raman con los campos E_3 y E_4 en la ecuación (21a) es despreciable y se obtienen expresiones simplificadas para la transformada inversa:

$$v_{23} = V_{23}(0) \exp(Az)$$

$$V_{13} = V_{23}(0) \frac{F}{D - A + i\phi_3} (\exp(Az) - \exp(Dz - i\phi_3 z)) \quad (22)$$

$$V_{41} = V_{23}(0) \frac{H}{A - G - i\phi_4} (\exp(Az) - \exp(Gz + i\phi_4 z))$$

Se ha supuesto que el único campo no nulo en $z=0$ es E_2 ($V_{23}(0) \neq 0$). Puesto que las partes reales de D y G son negativas, el crecimiento de los campos E_3 y E_4 para $z > D^{-1}, G^{-1}$ es exponencial y con la misma ganancia A del campo hiper-Raman. El desajuste de fase produce en ambos casos dos efectos: (a) Disminuye el factor multiplicativo de la exponencial, disminuyendo por ende la eficiencia de conversión. (b) Introduce oscilaciones en E_3 y E_4 para $z < D^{-1}$ y $z < G^{-1}$ respectivamente.

Este resultado analítico puede ser confrontado con cálculos numéricos. El programa utilizado resuelve el sistema de ecuaciones (6) en el estado estacionario para valores dados de los campos, mediante una rutina de inversión de matrices. Los elementos σ_{ij} así determinados son llevados a (15) para avanzar en un paso la integración numérica de las ecuaciones de propagación de los elementos matriciales reducidos v_{ij} . La integración se realiza mediante un predictor-corrector tipo Adams-Bashforth. Los nuevos valores de los campos se utilizan en (6) para recalcular la matriz densidad y así sucesivamente.

Para efectos del cálculo numérico se ha elegido como unidad de tiempo el nseg. y de longitud el cm. Las ratas de relajación $\Gamma_2=0.1$, $\Gamma_3=1.$, $\Gamma_{1j}=10$ $1 \neq j=1,2,3,4$, y la frecuencia efectiva de Rabi para la transición de dos fotones $|v_{21}|=1.21.$, están dadas en nseg^{-1} . Las ganancias Λ_2 , Λ_3 y Λ_4 (ec. 15) están dadas en $\text{nseg}^{-1}\text{cm}^{-1}$ y guardan entre sí la relación $\Lambda_2 = \Lambda_3/10 = \Lambda_4$. Estos valores han sido elegidos en concordancia con valores característicos de la generación de radiación de 158.9 nm y 229 nm en vapor de Cd (24), experimento al que se hará referencia más adelante.

Los resultados numéricos para $\Lambda_2=37$ y $\Delta_4=100$ pueden verse en las Figs. 2, 4. Por simplicidad se ha realizado el cálculo para $\Delta_1=0$, haciendo nulos arbitrariamente los corrimientos Stark dinámicos. En la Fig. 2 se observa el crecimiento exponencial, y con igual ganancia, de la intensidad de los campos con la longitud del amplificador para $z \leq 7$, en concordancia con las ecuaciones (22). Las curvas continuas fueron obtenidas suponiendo ajuste de fase perfecto; la curva punteada para desajustes de fase constantes $\phi_3=-1$, $\phi_4=-2$. Puede observarse que la introducción de un desajuste de fase

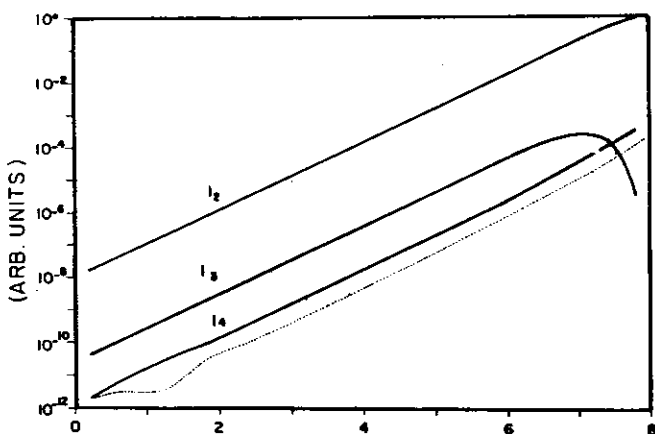


Figura 2. Intensidades de los campos E_2 , E_3 , E_4 en unidades arbitrarias como función de la coordenada del amplificador para una densidad de vapor constante. Las líneas continuas corresponden a desajustes de fase nulos y la línea punteada a $\phi_3=-1$, $\phi_4=-2\text{cm}^{-1}$. El cálculo fue realizado para $\Lambda_2=37\text{nseg}^{-1}\text{cm}^{-1}$, $\Delta_1=\Delta_2=0$, $\Delta_4=100$, $\Gamma_2=0.1$, $\Gamma_3=1.$, $\Gamma_{1j}=10$ nseg^{-1} , $1 \neq j=1,2,3,4$, y $|v_{21}|=1.21$ nseg^{-1} .

Los corrimientos Stark fueron hechos nulos arbitrariamente.

conlleva la aparición de una oscilación para $z \leq 7$ y una disminución notable de la intensidad del campo E_4 , dejando prácticamente inmodificados los otros campos.

Este comportamiento ya había sido predicho para los campos E_2 y E_3 en la referencia (27). En el régimen de campo hiper-Raman débil, la introducción en el modelo teórico del campo E_4 no altera la amplificación exponencial de los campos en el medio. Sólo se observa un corrimiento del régimen de saturación hacia regiones de mayor longitud del amplificador. (o de mayor densidad del medio, que es el parámetro variable en el experimento).

La Fig. 3 muestra la distribución de poblaciones en los cuatro niveles. En la región de campo hiper-Raman débil el sistema se comporta (esencialmente como un sistema de dos niveles ($|1\rangle$ y $|2\rangle$ en la Fig. 1) que bombeado por un campo cuasi-resonante (en este caso con una transición de dos fotones) alcanza en el estado estacionario igualdad de población en los dos niveles. Hacia $z = 7$ se observa el comienzo de la saturación. El campo hiper-Raman interactúa con la transición entre los estados $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ y tiende a equilibrar sus poblaciones. Un análisis más detallado de este régimen será hecho en la próxima sección.

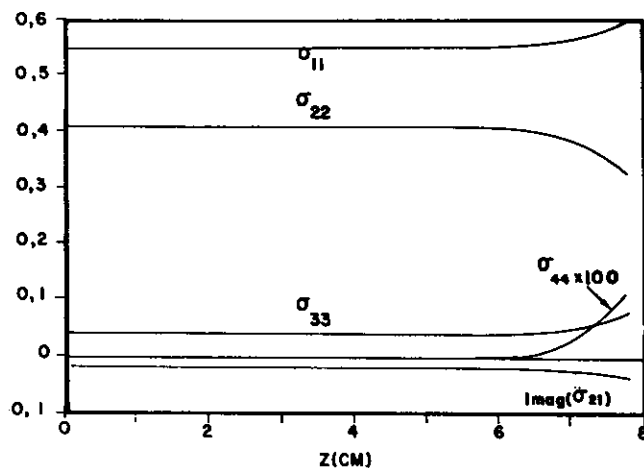


Figura 3. Poblaciones en los niveles activos como función de la longitud del amplificador para desajuste de fase nulo. Todos los demás parámetros como en la Fig. 2

V. Régimen de saturación

El análisis del régimen de saturación ha sido realizado numéricamente. En la Fig. 4 se muestran las poblaciones y la coherencia σ_{21} en función de la longitud del amplificador para $\Lambda_2=200$, $\Delta_4=100$ y desajuste de fase nulo. La saturación comienza alrededor de $z=2$, donde las poblaciones de los niveles $|2\rangle$ y $|3\rangle$ tienden a equilibrarse. Las curvas de intensidad correspondientes (Líneas continuas en la Fig. 5) ya no presentan un crecimiento exponencial, pero tampoco lineal como fue encontrado teóricamente para I_2 e I_3 en la referencia (27). La generación de la suma de frecuencias $2\nu_1 + \nu_2$ parece ser mucho más eficiente que la generación de la di-

ferencia. Sin embargo la eficiencia depende fuertemente del ajuste de fase: las curvas discontinuas en la Fig. 5 fueron obtenidas con $\phi_3 = -1$ y $\phi_4 = -2$. Mientras $I_2 \approx I_3$ aumentan ligeramente, I_4 decrece en un orden de magnitud y presenta oscilaciones.

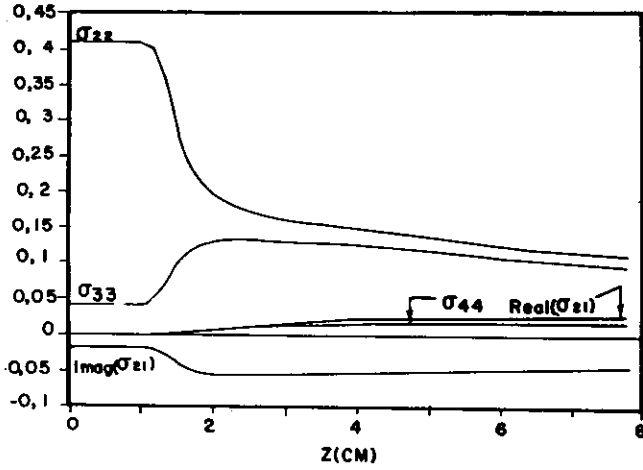


Figura 4. Poblaciones y coherencia de dos fotones como función de la longitud del amplificador para $\lambda_2 = 200 \text{ nseg}^{-1} \text{ cm}^{-1}$. Todos los demás parámetros como en la Fig. 2.

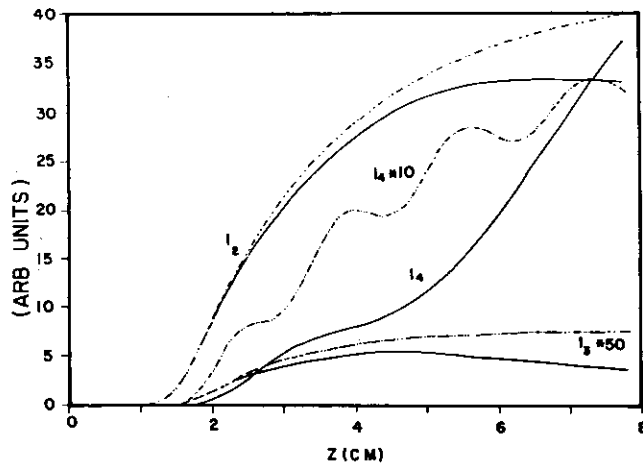


Figura 5. Dependencia de las intensidades con la coordenada del amplificador, para desajuste de fase nulo (líneas continuas) y para $\phi_3 = -1, \phi_4 = -2 \text{ cm}^{-1}$ (líneas discontinuas). Todos los parámetros como en la Fig. 4.

Experimentalmente (24) se ha observado una dependencia lineal de la intensidad hiper-Raman con la densidad del medio activo en la región de saturación. Este comportamiento se obtiene también aquí al reducir el acoplamiento entre los niveles $|2\rangle$ y $|4\rangle$ mediante un incremento de Δ_4 , como muestra la Fig. 6. Las líneas continuas corresponden a desajuste de fase nulo. I_4 sigue siendo generada con mayor eficiencia que I_3 , sin embargo, la introducción de desajustes de fase (líneas discontinuas) reduce fuertemente la intensidad I_4 y hace más eficiente la generación de la diferencia de frecuencias. Las curvas de población no difieren mayormente de las mostradas en la Fig. 4, excepto por una fuerte reducción en la población del nivel $|4\rangle$.

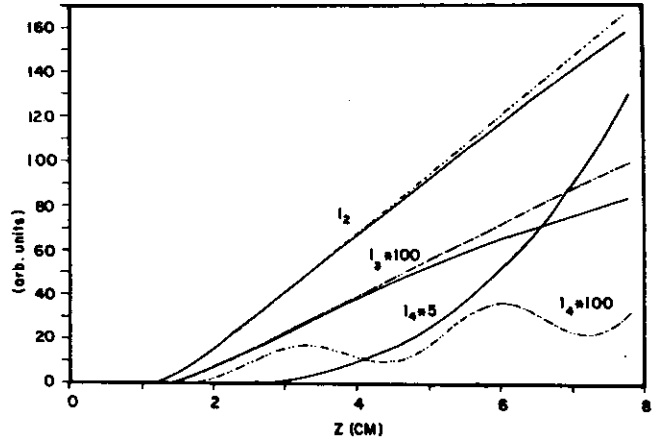


Figura 6. Intensidades como función de la coordenada del amplificador para $\Delta_4 = 1000 \text{ nseg}^{-1}$. Líneas continuas para desajuste de fase nulo y discontinuas para $\phi_3 = -1, \phi_4 = -2 \text{ cm}^{-1}$. Demás parámetros como en la Fig. 4.

VI. Discusión y comparación con datos experimentales

Como aplicación se realizaron cálculos tomando vapor de Cd como medio no lineal. 4-WSM y 4-WDM a 158.9 nm y 229 nm han sido observados (24) cuando un láser de 375 nm se sintoniza en resonancia con la transición $5s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 5s5s \ ^1S_0$. La mezcla de frecuencias $2\nu_1 + \nu_2$ tiene lugar con la radiación hiper-Raman de $1.04 \mu\text{m}$ generada en la transición $^1S_0 \rightarrow 5s5p \ ^1P_1$.

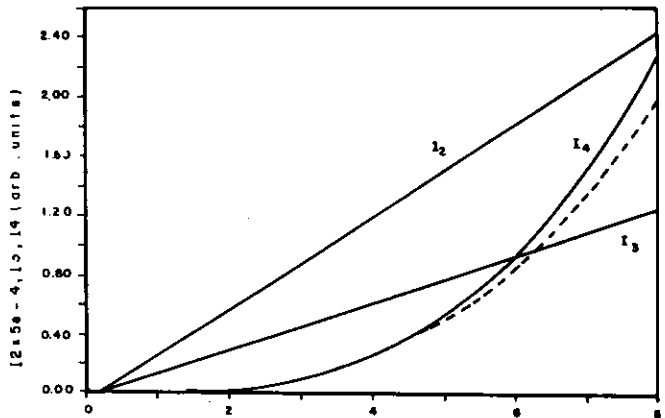


Figura 7. 4-WDM y 4-WSM para vapor de Cd bombeado por un láser de 375 nm en resonancia con una transición de dos fotones. $N_{\text{Cd}} = 10^{14} \text{ átomos/cm}^3$.

La Fig. 7 muestra las intensidades de los campos como función de la coordenada del amplificador para $N_{\text{Cd}} = 10^{14} \text{ átomos/cm}^3$. La gráfica ha sido calculada incluyendo corrimientos Stark dinámicos de los niveles y desajustes de fase. Estos últimos han sido calculados teniendo en cuenta la distribución de poblaciones para cada z. De esta forma quedan incluidas en el análisis las variaciones de índice de refracción por efectos de saturación de la transición de dos fotones o de la dispersión hiper-Raman. Las curvas continuas se obtuvieron suponiendo ajuste de fase en la región de saturación del

campo hiper-Raman mediante la adición de Argón como "buffer gas" a la densidad óptima N_0 . La curva punteada representa la intensidad de 4-WSM en ausencia de Argón. El efecto del desajuste de fase no es muy notable aquí, debido a la baja densidad del Cd. Para densidades de Cd mayores, el desajuste de fase introduce oscilaciones en la intensidad I_4 y la atenúa fuertemente.

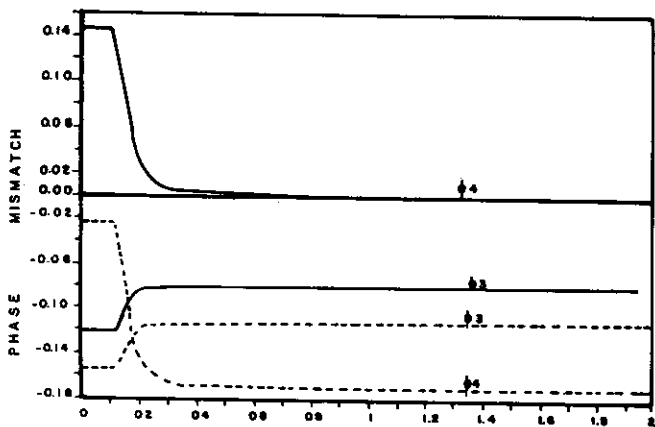


Figura 8. Variación de los desajustes de fase en el medio para propagación en vapor de Cd (curvas punteadas) y en una mezcla adecuada Cd: Ar (curvas continuas) para lograr ajuste de fase en la región de saturación del campo hiper-Raman.

La Fig. 8 muestra la variación en el medio de los desajustes de fase. Las curvas punteadas corresponden al desajuste de fase en el vapor de Cd y los trazos continuos a la mezcla Cd: Ar adecuada para lograr ajuste de fase. Para $z < 2$ cm la distribución de poblaciones es determinada por la saturación en la transición de dos fotones, pero para $z > 0.2$ la saturación del campo hiper-Raman altera esta distribución y cambia fuertemente los valores del desajuste de fase.

La comparación cuantitativa con el experimento es difícil dentro de nuestro modelo por varias razones: (a) Los cálculos han sido realizados en el estado estacionario. (b) El láser de bombeo se ha supuesto monocromático. (c) Las densidades atómicas utilizadas en el experimento dan valores para λ_2 mucho mayores que los que por razones de cálculo podemos utilizar aquí. Es de anotar sin embargo, que las predicciones teóricas hechas en (27) para la radiación hiper-Raman sobre las mismas bases, resultaron en excelente acuerdo cualitativo con los resultados experimentales.

Las curvas 9 y 10 son una comparación cualitativa de la dependencia de las intensidades con la densidad del medio y la intensidad del láser de bombeo respectivamente. La dependencia medida (24) de las intensidades de los campos con la longitud efectiva Nz puede verse en la Fig. 9. A las densidades atómicas (10^{17} - 10^{18} cm^{-3}), utilizadas en el experimento, el sistema se encuentra en el régimen de saturación. Las intensidades calculadas teórica-

mente se han superpuesto a los datos experimentales, gráficas como función de $N(z-z_{\text{sat}})/z_{\text{sat}}$ corresponde a la longitud del amplificador en que se inicia el régimen de saturación. Los cálculos fueron realizados para $\lambda_2=1000$, $\Delta_4=5000$, y $\Gamma_{ij}=50$, valores que si bien no coinciden con los del experimento permiten una comparación cualitativa con los resultados experimentales. No se incluyó el desajuste de fase ni corrimientos Stark dinámicos. El acuerdo cualitativo es excelente excepto para la región de altas densidades en que probablemente el desajuste de fase se hace importante.

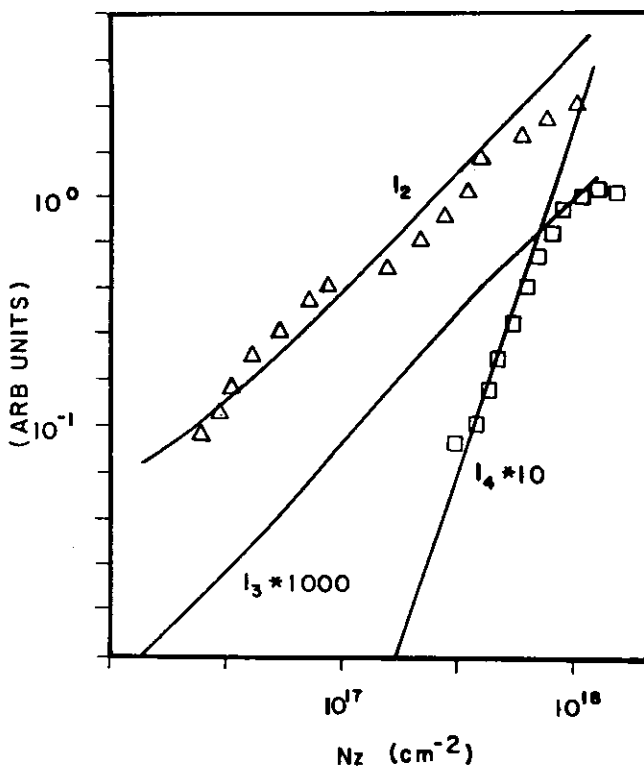


Figura 9. Intensidades de campo en unidades arbitrarias como función de la densidad del medio. Han sido también representados valores experimentales para I_2 (Δ) e I_4 (\square) tomados de la referencia (24). Para el cálculo teórico se empleó $\lambda_2=1000$ $\text{nseg}^{-1}\text{cm}^{-1}$, $\Delta_4=5000$, y $\Gamma_{ij}=50$ nseg^{-1} . Los demás parámetros como en la Fig. 2.

La dependencia de los campos con la intensidad del campo de bombeo puede verse en la Fig. 10. Teóricamente se predice una saturación e incluso un decrecimiento de la intensidad del campo E_4 con la intensidad de bombeo. Experimentalmente la saturación parece tener lugar para campos mucho más intensos, lo que es comprensible debido a que en el cálculo teórico hemos supuesto un láser de bombeo monocromático.

Para estudiar el efecto del desajuste de fase se realizaron cálculos para la misma ganancia de la Fig. 7 (correspondiente a $N_{\text{Cd}}=10^{14}$ átomos/ cm^3) pero incrementando el desajuste de fase en un orden de magnitud. La simulación consistente del experimento para ($N_{\text{Cd}}=10^{15}$ átomos/ cm^3) no es viable debido a limitaciones computacionales. La curva de trazo continuo en la Fig. 11 representa el caso de ajuste de fase perfecto con Argón a la densidad óp-

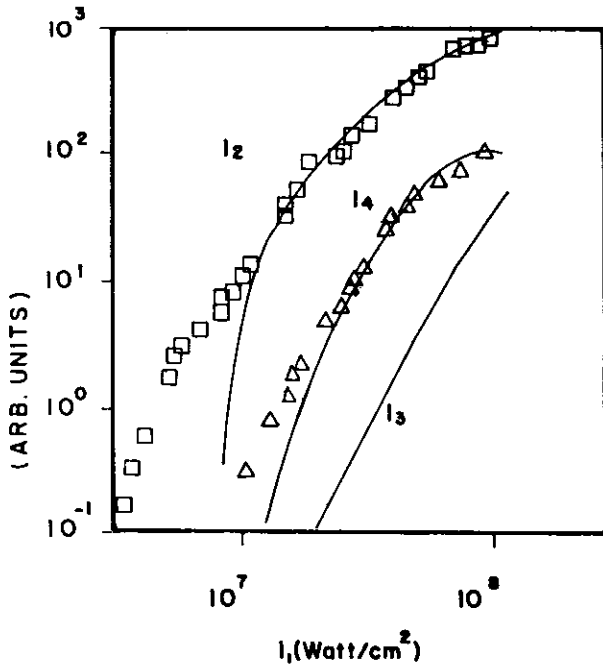


Figura 10. Intensidades de campo en función de la intensidad del láser de bombeo. Los valores experimentales para I_2 (\square) e I_4 (Δ) fueron tomados de la referencia (24). Parámetros como en la Fig. 9.

tima N_0 . En orden decreciente y trazos discontinuos se muestran las intensidades obtenidas para densidades de Argón de 0.7, 0.5, 0.4, 0.3, y 0.1 N_0 . En la Fig. 12 se ha graficado la intensidad I_4 obtenida al final del amplificador, en $z=1=8\text{cm}$ como función de la densidad de Argón. La curva representa la función de desajuste de fase $\text{sen}^2(\phi l/2)/(\phi l/2)^2$ características de la mezcla de frecuencias con ondas planas (9).

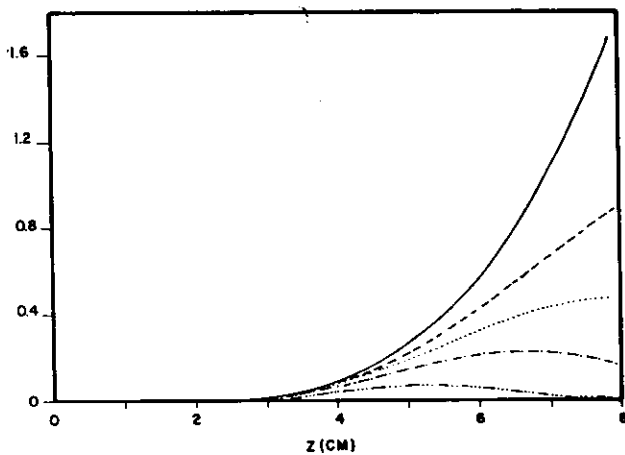


Figura 11. Intensidad de 4-WSM en función de la coordenada del amplificador para diferentes densidades de Argón. La curva continua corresponde a la densidad óptima de ajuste de fase perfecto en la región de saturación (N_0). Las curvas discontinuas corresponden en orden decreciente a densidades de Argón de 0.7, 0.5, 0.4, 0.3, 0.1 N_0 .

Finalmente la Fig. 13 muestra curvas normalizadas de la intensidad de los campos como función de Δ_1 . La curva continua representa la ganancia hi-

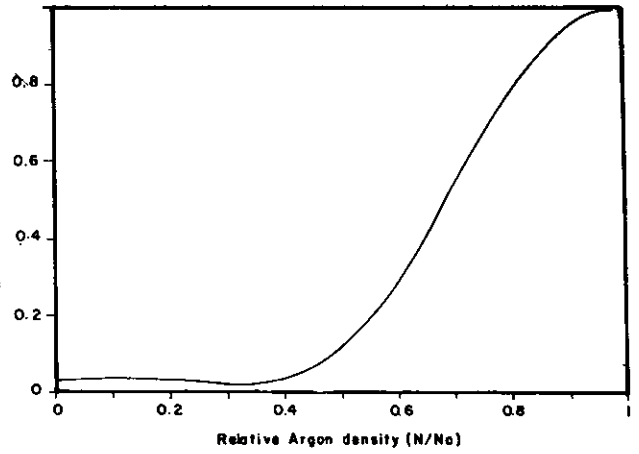


Figura 12. Función de desajuste de fase: Intensidad normalizada de 4-WSM como función de la densidad de Argón referida a la densidad óptima N_0 .

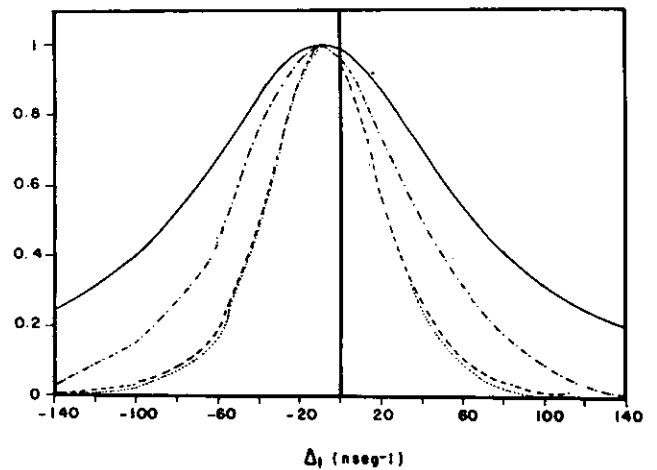


Figura 13. Curva continua: Perfil de ganancia de la dispersión hiper-Raman a la entrada del amplificador como función de Δ_1 . Curvas discontinuas: Perfiles obtenidos al final del amplificador: -.-.- radiación hiper-Raman, - - - 4-WDM, . . . 4-WSM. Para efectos de comparación, todas las curvas han sido normalizadas a 1. $N_{Cd}=10^{14}$ átomos/cm³.

per-Raman para pequeños espesores efectivos, ganancia que determina en lo esencial la estructura de las curvas obtenidas después de propagación a lo largo del amplificador (curvas en trazo discontinuo) y por consiguiente la sintonizabilidad de la radiación generada por mezcla de cuatro ondas. Experimentalmente se ha observado un ancho mucho mayor para la curva correspondiente a la diferencia de frecuencias que para la correspondiente a la suma (24). Este efecto, que no se observa aquí, puede deberse a los desajustes de fase, que a las relativamente altas densidades de Cd ($N_{Cd}=10^{17}$ átomos/cm³) utilizadas en el experimento resultan importantes y pueden incluso ser responsables de la baja eficiencia de conversión observada.

VII. Conclusiones

De los resultados presentados aquí puede concluirse que la generación de frecuencias $2\nu_1 + \nu_2$ en vapores atómicos puede ser un proceso más eficien-

te que la generación de la diferencia. Tal debe ser el caso especialmente cuando los niveles $|3\rangle$ y $|4\rangle$ están casi-equidistantes energéticamente del nivel $|2\rangle$. Esta situación puede darse en experimentos con átomos de Rydberg. Sin embargo, un factor fuertemente limitante de la eficiencia del proceso es el ajuste de fase, que debería entonces ser procurado mediante una adecuada combinación del vapor metálico con gases nobles.

El conocimiento de la dinámica de los procesos analizados puede ser apoyo útil para los experimentadores interesados en ampliar cada vez más el rango espectral de radiación coherente sintonizable en el UV y VUV. Este tipo de fuentes encuentran grande aplicación en mediciones espectroscópicas

de alta resolución en átomos y moléculas, o en espectroscopia de fotoionización y fotodisociación por excitación selectiva, y su potencialidad en otros campos es inmensa.

Es claro que la generación de VUV por 4-WSM debe ser más eficiente si se utilizan dos láseres de bombeo (17, 21, 22); pero se ha demostrado que utilizando un sólo láser de bombeo es posible generar radiación ultravioleta por 4-WSM en forma tan o más eficiente que mediante 4-WDM si la frecuencia $2\nu_1 + \nu_2$ es cercanamente resonante con la frecuencia de una transición atómica, lo que permitiría obtener un gran número de líneas en el VUV bombeando resonantemente vapores metálicos a lo largo de la serie de estados Rydberg.

REFERENCIAS

1. GOPPERT-MAYER, M. 1931. *Ann. Phys. (Leipzig)*. 9, 273.
2. MAIMAN, M. 1960. *Nature* 187, 493.
3. FRANKEN, P.A., HILL, A.E., PETERS, C.W. & WEINREICH, G. 1961. *Phys. Rev. Lett.* 7, 118.
4. MOSSBERG, T., FLUSBERG, A. & HARTMANN, S.R. 1978. *Opt. Commun.* 25, 121.
5. DINEV, S., GUZMAN DE GARCIA, A., MEYSTRE, P., SALOMAA, R.R., & WALTHER, H. 1983. "Laser Spectroscopy VI", ed. H.P. Weber and W. Lüthy, Springer Verlag, p. 183.
6. NEW, G.H.C. & WARD, J.F. 1967. *Phys. Rev. Lett.* 19, 556. WARD, J.F. & NEW, G.H.C. 1969. *Phys. Rev.* 185, 57.
7. BOKOR, J., BUCKSBAUM, P.H. & FREEMAN, R.R. 1983. *Opt. Lett.* 8, 217. KUNG, A.H. 1983. *Opt. Lett.* 8, 24. LAGO, A., HILBER, G., HILBIG, R. & WALLENSTEIN, R. 1985. *Láser Optoelektron.* 17, 357.
8. HARRIS, S.E. & MILES, R.B. 1971. *Appl. Phys. Lett.* 19, 385. MILES, R.B. & HARRIS, S.E. 1973. *IEEE J. QE-9*, 470. YOUNG, J.F., BJORKLUND, G.C., KUNG, A.H., MILES, R.B., HARRIS, S.E. 1971. *Phys. Rev. Lett.* 27, 1551.
9. BJORKLUND, G.C. 1975. *IEEE J. QE-11*, 287.
10. KUNG, A.H., YOUNG, J.F., BJORKLUND, G.C. & HARRIS, S.E. 1972. *Phys. Rev. Lett.* 29, 985.
11. ———, ——— & HARRIS, S.E. 1973. *Appl. Phys. Lett.* 22, 301.
12. HARRIS, S.E., YOUNG, J.F., KUNG, A.H., BLOOM, D.M. & BJORKLUND, G.C. "Laser Spectroscopy I" ed. R.G. Brewer and A. Mooradian, Plenum Press, N.Y., p. 59.
13. HODGSON, R.T., SOROKIN, P.P. & WYNNE, J.J. 1974. *Phys. Rev. Lett.* 32, 343.
14. HILBIG, R., HILBER, G., TIMMERMANN, A. & WALLENSTEIN, R. 1983. "Laser Spectroscopy VI" ed. H.P. Weber and W. Lüthy, Springer Verlag, Berlin Heidelberg p. 387; S.D., Kramer, C.H. Chen et al., *ibid.*, p. 392.
15. HILBIG, R., HILBER, G., LAGO, A., TIMMERMANN, A. & WALLENSTEIN, R. 1985. "Laser Spectroscopy VII" ed. T.W. Hänsch and Y.R. Shen, Springer Verlag, Berlin Heidelberg, p. 181.
16. STOICHEFF, R.P., HERMAN, P.R., LAROCQUE, P.E. & LIPSON, R.H. 1985. "Laser Spectroscopy VII" ed. T.W. Hänsch and Y.R. Shen, Springer Verlag, Berlin Heidelberg, p. 174.
17. HILBIG, R., HILBER, G., LAGO, A., WOLFF, B. & WALLENSTEIN, R. 1986. *Comments At. Mol. Phys.* D18, 157.
18. ARMSTRONG, J.A., BLOEMBERGEN, N., DUCUING, J. & PERSHAN, P.S. 1962. *Phys. Rev.* 127, 1918.
19. GEORGES, A.T., LAMBROPOULOS, P. & MARBURGER, J.H. 1977. *Phys. Rev.* A15, 300.
20. SCHEINGRABER, H. & VIDAL, C.R. 1981. *Opt. Commun.* 38, 75.
21. JAMROZ, W. & STOICHEFF, B.P. 1983. In *Progress in Optics*, ed. E. Wolf, North Holland, Amsterdam, vol. 20. p. 326.
22. HILBER, G., LAGO, A. & WALLENSTEIN, R. 1987. "Laser Spectroscopy VIII" ed. W. Persson and S. Svanberg, Springer Verlag, p. 446.
23. REIF, J. & WALTHER, H. 1978. *Appl. Phys.* 15, 361.
24. HEINRICH, J. 1983. *Dissertation, Universität Düsseldorf.*
25. HERNANN, J.A. & THOMPSON, B.V. 1981. *J. Phys. B* 14, 2961.
26. LOUISELL, W.H. & MEYSTRE, P. 1981. *Phys. Rev. A* 23, 1015.
27. GUZMAN DE GARCIA, A. 1984. *Dissertation, Ludwig-Maximilian Universität, München, y referencias citadas allí.*
28. SMITH, A.V. & WARD, J.F. 1980. *IEEE J. QE-17*, 525.
29. HILBIG, R. & WALLENSTEIN, R. 1983. *IEEE J. QE-19*, 194.
30. AUTLER, S.H. & TOWNES, C.H. 1955. *Phys. Rev.* 100, 707. JAVAN, A. 1957. *Phys. Rev.* 107, 1579. KONTOROVICH, V.M., PROKHOROV, A.M. 1958. *Sov. Phys. JETP* 6, 1100. BRUNNER, W., PAUL, H., RICHTER, G. & STEUDEL, H. 1968. *Ann. Physik* 21, 187. STEUDEL, H. 1969. *Ann. Physik* 22, 113.
31. ALLEN, L. & EBERLY, J.H. 1975. "Optical resonance and two-level atoms". Wiley NY, y referencias allí citadas
32. TAKATSUJI, M. 1975. *Phys. Rev. A* 11, 619
33. GRISCHKOWSKY, D., LOY, M.M. & LIAO, P.F. 1975. *Phys. Rev. A* 12, 251.
34. GUZMAN DE GARCIA, A., MEYSTRE, P. & SARGENT, M. III, 1982. *Opt. Commun.* 43, 364.
35. GUZMAN DE GARCIA, A., MEYSTRE, P. & SALOMAA, R.R.E. 1985. *Phys. Rev. A* 32, 1531.