

# Estudio de las respuestas absorptiva y dispersiva en la señal de mezcla de cuatro ondas resonantes no-degeneradas

A.E. CÁRDENAS, J.L. PAZ Y A.J. HERNÁNDEZ

*Departamento de Química, Universidad Simón Bolívar  
Apartado postal 89000, Caracas 1080A, Venezuela*

Recibido el 27 de agosto de 1993; aceptado el 15 de diciembre de 1993

RESUMEN. En este artículo se estudian las propiedades topológicas en el espacio de frecuencias de la absorción y del índice de refracción para la señal de mezcla de cuatro ondas resonantes no-degeneradas. Este espacio es definido por las frecuencias de los campos de bombeo y prueba,  $\omega_1$  y  $\omega_2$ , respectivamente. En nuestro modelo se trata el campo fuerte de bombeo a orden infinito y al primer orden para los haces de prueba y señal. Se resuelven las ecuaciones de matriz densidad en el dominio de las frecuencias y las ecuaciones de propagación para los distintos campos. Consideramos explícitamente la variación espacial del campo de bombeo en su recorrido óptico. Nuestros resultados muestran cómo las oscilaciones de población a la frecuencia de desintonizamiento bombeo-prueba, responsables de la aparición de los pozos de ganancia coherente, son notablemente influenciadas por los efectos de propagación de los campos, la concentración química del material activo y la magnitud del ensanchamiento inhomogéneo de la línea de absorción espectral.

ABSTRACT. We study in this article the topological properties in the frequency space, of the absorption and the refraction index for the resonant non-degenerate four-wave mixing signal. This space is defined by the pump- and probe-field frequencies,  $\omega_1$  and  $\omega_2$ , respectively. Our model treats the strong pumping beam to infinite order whereas the weaker signal and probe beams are approximated to first order. We solve the density matrix equations in frequency domain and the propagation equations for the different fields. We consider explicitly the space variation for the pumping field as it covers its optical path. Our results show that the oscillations of population at the detuning pumping-probe frequency, which are responsible for the appearance of the coherent gain dips, are strongly influenced by the effects of field propagation, chemical concentration of the active material, and the magnitude of the inhomogeneous broadening of the spectral absorption line.

PACS: 42.65.Es

## 1. INTRODUCCIÓN

Las técnicas espectroscópicas no-lineales han sido ampliamente utilizadas en los últimos años para estudiar los procesos de interacción de medios materiales con haces electromagnéticos intensos [1,2]. Así, por ejemplo, las espectroscopías de saturación [3] y polarización [4,5] se han empleado para la determinación de tiempos de relajación en sistemas moleculares. Igualmente las técnicas de mezcla de cuatro ondas [6-8] han mostrado ser útiles para el estudio de las propiedades dinámicas de ese tipo de interacciones, así como para estudios analíticos y de instrumentación óptica.

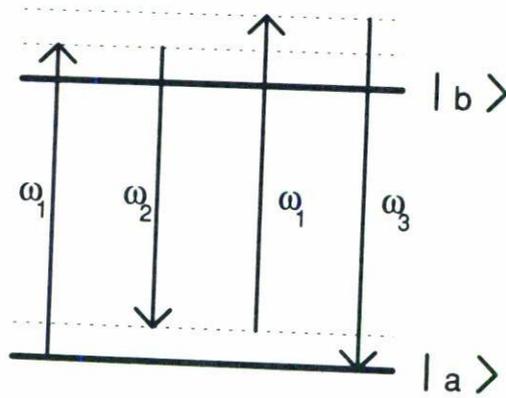


FIGURA 1. Esquema de niveles energéticos para el proceso de mezcla de ondas resonantes no-degeneradas tipo Rayleigh.

Una técnica particular de mezcla de cuatro ondas es la espectroscopía de mezcla de ondas resonantes no-degeneradas tipo Rayleigh (MOTR) [9-11], que involucra la presencia de dos haces electromagnéticos incidentes sobre un medio material. Uno de los haces llamado de bombeo, es de alta intensidad, con frecuencia  $\omega_1$  y vector de onda  $\mathbf{k}_1$ . El otro, de prueba, es más débil y tiene frecuencia  $\omega_2$  y vector de onda  $\mathbf{k}_2$ . Se detecta, además de los haces incidentes transmitidos, la generación de un haz no-lineal que posee frecuencia  $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$  y vector de onda  $\mathbf{k}_3 \approx 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ . El proceso fotónico asociado a esta técnica puede verse en la Fig. 1.

Distintos estudios han sido realizados empleando la espectroscopía de mezcla de cuatro ondas, con el fin de medir tiempos de relajación ultracortos característicos de sistemas moleculares, particularmente de compuestos orgánicos [12]. Recientes estudios con esta técnica han permitido con base en distintas características asociadas a los espectros en frecuencia, la diferenciación de la homogeneidad e inhomogeneidad de la línea espectral para sistemas moleculares específicos [13]. Por otra parte, diversos estudios han permitido la formulación de modelos de propagación de los campos electromagnéticos en fase condensada [14]. De manera más reciente y relacionada con esta investigación, W. Wang y colaboradores [15] estudian las propiedades espectrales y de coherencia de haces gaussianos, propagándose en medios dispersivos y absortivos.

En el presente artículo estudiamos las propiedades absortivas y dispersivas de la señal no-lineal no-degenerada de mezcla de cuatro ondas tipo Rayleigh que oscila a la frecuencia  $\omega_3$ . El análisis lo hacemos en el llamado espacio de frecuencias en donde se grafican los coeficientes de absorción y de refracción en función de los desintonizamientos en frecuencia de ambos haces incidentes.

Para modelar el medio molecular se usa un conjunto estadístico de sistemas de dos niveles con una distribución lorentziana de frecuencias de resonancia. De esta manera se toma en cuenta el ensanchamiento inhomogéneo de la línea de absorción, el cual es producido, para medios en fase condensada, por efectos de campo local.

Por otra parte, algunos de los estudios de señales de mezcla de cuatro ondas se han llevado a cabo dentro del régimen local [16,17]. Se han efectuado estudios en donde se incluye el efecto de la propagación de los campos, al considerar que el medio material

tiene un grosor finito, pero en ellos se emplea o un ensanchamiento homogéneo de la línea espectral o un tratamiento perturbativo hasta un tercer orden o se supone la validez de la aproximación de amplitud espacial de bombeo constante [18].

En este trabajo, analizamos los efectos de la concentración del soluto, del ensanchamiento inhomogéneo y del grosor de la celda sobre los coeficientes de absorción y de refracción al resolver el problema de la propagación de los campos de forma exacta. De manera similar estudiamos la influencia de esas variables en las llamadas contribuciones coherentes e incoherentes para la absorción e índice de refracción. Igualmente, al emplear el espacio de frecuencias para este estudio podemos considerar, de manera detallada, el efecto de los cambios en frecuencia de los haces incidentes sobre esos coeficientes.

## 2. MODELO TEÓRICO

### 2.1. Polarizaciones microscópicas

Se modela el medio molecular bajo estudio (una solución química con un soluto activo a los campos electromagnéticos) como una colectividad de sistemas de dos niveles energéticos con una distribución inhomogénea de sus frecuencias de resonancia [19]. Por otra parte, el solvente se supone transparente a los campos. El comportamiento dinámico del sistema molecular frente a los campos es convenientemente tratado dentro del formalismo de la matriz densidad, resolviendo las ecuaciones ópticas de Bloch correspondientes [20]

$$\dot{\rho}_{ba}(t) = \dot{\rho}_{ab}^*(t) = - \left( i\omega_0 + \frac{1}{T_2} \right) \rho_{ba}(t) - \frac{i}{\hbar} (\boldsymbol{\mu}_{ba} \cdot \mathbf{E}) \rho_D(t), \quad (1)$$

$$\dot{\rho}_D(t) = \frac{2i}{\hbar} \{ (\boldsymbol{\mu}_{ab} \cdot \mathbf{E}) \rho_{ba}(t) - \rho_{ab}(t) (\boldsymbol{\mu}_{ba} \cdot \mathbf{E}) \} - \frac{1}{T_1} (\rho_D(t) - \rho_D^{(0)}), \quad (2)$$

donde los dos niveles energéticos resonantes con los campos se denotan  $|a\rangle$  y  $|b\rangle$ , con energías  $E_b > E_a$  y  $\omega_0 = (E_b - E_a)/\hbar$ . Adicionalmente se ha definido la diferencia de poblaciones como  $\rho_D(t) = \rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t)$ , siendo  $\rho_D^{(0)}$  la diferencia de poblaciones en el equilibrio térmico. Se ha considerado además que la interacción entre el sistema dinámico y los haces electromagnéticos es del tipo dipolo eléctrico  $(-\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E})$ , donde  $\boldsymbol{\mu} = -er$  denota el operador momento dipolar para la molécula. Se ha supuesto que las funciones de onda que describen los estados  $|a\rangle$  y  $|b\rangle$  tienen paridad definida, de modo que los elementos diagonales de  $\boldsymbol{\mu}$  son cero en la base de estos estados. Finalmente,  $T_1$  y  $T_2$  representan, respectivamente, el tiempo de relajación de las poblaciones y el tiempo de relajación de las coherencias inducidas por los campos.

En la espectroscopía de mezcla de cuatro ondas resonantes no-degeneradas el campo electromagnético total  $\mathbf{E}$  que interactúa con el medio material está compuesto de tres haces, los cuales describimos clásicamente como ondas planas monocromáticas. Es decir,

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2 + \mathbf{E}_3, \quad (3)$$

donde

$$\mathbf{E}_j = \mathbf{E}_{0j} \cos[\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r} - \omega_j t + \Phi_j] = \mathbf{E}(\omega_j) \exp(-i\omega_j t) + \text{c.c.},$$

y

$$\mathbf{E}(\omega_j) = \left( \frac{\mathbf{E}_{0j}}{2} \right) \exp[i(\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r} + \Phi_j)] \quad (j = 1, 2, 3)$$

representa la componente de Fourier del campo que oscila a la frecuencia  $\omega_j$ , con un vector de onda  $\mathbf{k}_j$  y una fase  $\Phi_j$ . En la expresión para el campo total, además de los campos incidentes de bombeo  $\mathbf{E}_1$  y de prueba  $\mathbf{E}_2$ , se ha incluido el haz de mezcla de ondas  $\mathbf{E}_3$ . Este campo empieza a generarse desde el mismo origen de la celda, y al considerar que ésta tiene un tamaño finito (tomando en cuenta así los efectos de propagación y de absorción misma), la presencia del campo  $\mathbf{E}_3$  debe incluirse a todo lo largo de la celda.

Para determinar las expresiones para los elementos de la matriz densidad diagonales (asociados con las poblaciones de los dos niveles energéticos que se consideran) y no-diagonales (relacionados a las coherencias inducidas por la presencia del campo), se incluyen en las ecuaciones de Bloch las expresiones para el campo total. Dentro del estado estacionario y mediante el uso de la aproximación de la onda rotante (ya que se emplean haces con frecuencia cercana a la de la transición) [21,22], se obtienen soluciones de tipo perturbativo, pues, aunque se ha considerado el campo de bombeo a todos los órdenes de intensidad, a los campos de prueba y de señal de mezcla de ondas se los ha tratado sólo a un primer orden cada uno. Bajo estas consideraciones se consiguen las siguientes expresiones para las distintas componentes de Fourier de las coherencias del sistema (polarizaciones microscópicas)

$$\rho_{ba}(\omega_3) = \beta_3 \Omega_3 + \nu_3 \Omega_2^*, \quad (4)$$

$$\rho_{ba}(\omega_2) = \beta_2 \Omega_2 + \nu_2 \Omega_3^*, \quad (5)$$

$$\rho_{ba}(\omega_1) = \beta_1 \Omega_1, \quad (6)$$

donde

$$\nu_3 = \frac{-2i\Omega_1^2 \left( \frac{1}{D_2^*} + \frac{1}{D_1} \right)}{D_3 \left[ \Gamma + 2|\Omega_1|^2 \left( \frac{1}{D_2^*} + \frac{1}{D_3} \right) \right]} \rho_D^{\text{dc}},$$

$$\beta_3 = \left[ -i \frac{2|\Omega_1|^2 \left( \frac{1}{D_3} + \frac{1}{D_1^*} \right)}{D_3 \left[ \Gamma + 2|\Omega_1|^2 \left( \frac{1}{D_2^*} + \frac{1}{D_3} \right) \right]} + \frac{i}{D_3} \right] \rho_D^{\text{dc}},$$

$$\beta_2 = \left[ -i \frac{2|\Omega_1|^2 \left( \frac{1}{D_2} + \frac{1}{D_1^*} \right)}{D_2 \left[ \Gamma^* + 2|\Omega_1|^2 \left( \frac{1}{D_2} + \frac{1}{D_3^*} \right) \right]} + \frac{i}{D_2} \right] \rho_D^{\text{dc}},$$

$$\nu_2 = \frac{-2i\Omega_1^2 \left( \frac{1}{D_3^*} + \frac{1}{D_1} \right)}{D_2 \left[ \Gamma^* + 2|\Omega_1|^2 \left( \frac{1}{D_2} + \frac{1}{D_3^*} \right) \right]} \rho_D^{\text{dc}},$$

y

$$\beta_1 = \frac{i}{D_1} \rho_D^{\text{dc}};$$

en donde la componente dc de la diferencia de poblaciones en la presencia del haz de bombeo intenso es

$$\rho_D^{\text{dc}} = \frac{|D_1|^2 T_2^2}{|D_1|^2 T_2^2 + 4S} \rho_D^{(0)}. \tag{7}$$

El desintonizamiento en frecuencia de los haces incidentes es  $\Delta = \omega_1 - \omega_2$ , y los otros símbolos se definen como

$$D_j = \frac{1}{T_2} + i(\omega_0 - \omega_j) \quad \text{con } j = 1, 2, 3,$$

$$\Gamma = \frac{1}{T_1} - i\Delta, \quad \Omega_j = \frac{\mu_{ab} \cdot \mathbf{E}(\omega_j)}{\hbar} \quad \text{y } S = T_1 T_2 |\Omega_1|^2.$$

$S$  se define como el parámetro de saturación y representa una medida de la intensidad del acoplamiento radiación-materia. La frecuencia de Rabí para el haz fuerte de bombeo está definida como  $|\Omega_1|$ .

### 2.2. Polarizaciones macroscópicas

Para el cálculo de las componentes de la polarización macroscópica se realiza una integración sobre la distribución inhomogénea de las frecuencias de resonancia de los sistemas de dos niveles:

$$\mathbf{P}(\omega_j) = N \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega_0 L(\omega_0) \langle \rho_{ba}(\omega_j) \mu_{ab} \rangle, \tag{8}$$

donde  $N$  representa el número de moléculas activas por unidad de volumen y la distribución  $L(\omega_0)$  es tomada de tipo lorentziana:

$$L(\omega_0) = \frac{1}{\pi} \left( \frac{\gamma}{(\omega_0 - \omega_c)^2 + \gamma^2} \right), \tag{9}$$

donde  $2\gamma$  es el ancho a la mitad de la altura y  $\omega_c$  es el centro de la curva lorentziana. El signo  $\langle \rangle$  en la Ec. (8) representa un promedio sobre todas las orientaciones vectoriales

posibles de los campos y momentos de transición. Suponiendo la validez de la aproximación escalar [23], se calculan las distintas componentes de la polarización al introducir dentro de la Ec. (8) las Ecs. (4), (5) y (6). La integral de la Ec. (8) es resuelta empleando variable compleja y usando el teorema de los residuos para un contorno cerrado en el semi-plano superior obteniéndose:

$$P(\omega_3) = \chi_{\text{ef}}^{\text{acop}}(\omega_3)E^2(\omega_1)E^*(-\omega_2) + [\chi_{\text{ef}}^{\text{coh}}(\omega_3) + \chi_{\text{ef}}^{\text{incoh}}(\omega_3)] E(\omega_3) + \chi^{(\text{sv})}(\omega_3)E(\omega_3), \quad (10a)$$

$$P(\omega_2) = \chi_{\text{ef}}^{\text{acop}}(\omega_2)E^2(\omega_1)E^*(-\omega_3) + [\chi_{\text{ef}}^{\text{coh}}(\omega_2) + \chi_{\text{ef}}^{\text{incoh}}(\omega_2)] E(\omega_2) + \chi^{(\text{sv})}(\omega_2)E(\omega_2), \quad (10b)$$

$$P(\omega_1) = \chi_{\text{ef}}^{(1)}E(\omega_1) + \chi^{(\text{sv})}(\omega_1)E(\omega_1), \quad (10c)$$

donde  $\chi^{(\text{sv})}(\omega_j)$  es la susceptibilidad eléctrica para el solvente a la frecuencia del campo  $\omega_j$ ,  $\chi_{\text{ef}}^{\text{acop}}(\omega_j)$  representa la susceptibilidad compleja escalar efectiva a la frecuencia  $\omega_j$  que da cuenta del acoplamiento entre los haces débiles de prueba y de señal;  $\chi_{\text{ef}}^{\text{coh}}(\omega_j)$  y  $\chi_{\text{ef}}^{\text{incoh}}(\omega_j)$  representan las componentes de la susceptibilidad que dan (respectivamente) las contribuciones coherentes e incoherentes para la absorción y dispersión de los haces débiles [24,25]. Las expresiones para las distintas susceptibilidades vienen dadas por

$$\chi_{\text{ef}}^{\text{coh}}(\omega_k) = \frac{4N\gamma\mu_{ab}^2\rho_D^{(0)}}{\hbar T_2^4 T_1(\Gamma\delta_{k,3} + \Gamma^*\delta_{k,2})} \left[ \frac{2}{T_2} \pm (-i\Delta) \right] \times \left\{ \frac{[1 - \gamma T_2 + iT_2(\omega_c - \omega_1)][1 + \gamma T_2 - iT_2(\omega_c - \omega_2)][1 + \gamma T_2 - iT_2(\omega_c - \omega_3)]}{A_3^\pm} + \frac{[1 - \sqrt{1 + 4S}][(1 + \sqrt{1 + 4S})^2 + \Delta^2 T_2^2]}{B_3^\pm} + \frac{(\pm)4i\Delta T_2[1 - (\pm)i\Delta T_2]}{C_3^\pm} + \frac{[1 + iT_2(\pm a + bi)][[1 - iT_2(\pm a + bi)]^2 + \Delta^2 T_2^2]}{F_3^\pm} \right\} S, \quad (11a)$$

$$\chi_{\text{ef}}^{\text{acop}}(\omega_k) = \frac{4N\gamma\mu_{ab}^4\rho_D^{(0)}}{\hbar^3 T_2(\Gamma\delta_{k,3} + \Gamma^*\delta_{k,2})} \left[ \frac{2}{T_2} \pm (-i\Delta) \right] \times \left\{ \frac{1 + \gamma T_2 - i(\omega_c - \omega_1)T_2}{A_2^\pm} + \frac{1 + \sqrt{1 + 4S}}{B_2^\pm} + \frac{1 - iT_2(\pm a + bi)}{F_2^\pm} \right\}, \quad (11b)$$

$$\chi_{\text{ef}}^{\text{incoh}}(\omega_k) = \frac{-2N\gamma\mu_{ab}^2\rho_D^{(0)}}{\hbar T_2^3} \left\{ \frac{[1 + T_2^2(\omega_c - \omega_1 + i\gamma)^2][1 + \gamma T_2 - iT_2[\omega_c - (\omega_1 + n\Delta)]]}{A_1^\pm} \right\}$$

$$-\frac{4S[1 + \sqrt{1 + 4S} \pm i\Delta T_2]}{B_1^\pm} + \frac{2(\pm)\Delta T_2[(\pm)\Delta T_2 + 2i]}{C_1^\pm} \Bigg\}, \quad (11c)$$

con  $k = 2$  y  $3$ . La tríada de símbolos  $(n, k, \pm)$  equivale a  $(1, 3, +)$  para el haz de mezcla de ondas, y a  $(-1, 2, -)$  para el haz de prueba. Para el campo de bombeo se tiene

$$\chi_{\text{ef}}^{(1)}(\omega_1) = \frac{-2N\gamma\mu_{ab}^2\rho_D^{(0)}}{\hbar T_2} \left\{ \frac{1 + \gamma T_2 - i(\omega_c - \omega_1)T_2}{A_0} + \frac{1 + \sqrt{1 + 4S}}{B_0} \right\}, \quad (11d)$$

donde

$$\begin{aligned} A_0 &= 2i\gamma \left[ (\omega_c - \omega_1 + i\gamma)^2 + \frac{1 + 4S}{T_2^2} \right], \\ B_0 &= 2i \left[ \left( \omega_1 - \omega_c + i\frac{\sqrt{1 + 4S}}{T_2} \right)^2 + \gamma^2 \right] \left[ \frac{\sqrt{1 + 4S}}{T_2} \right], \\ A_1^\pm &= A_0 \left\{ [\omega_c - (\omega_1 + n\Delta) + i\gamma]^2 + \frac{1}{T_2^2} \right\}, \\ B_1^\pm &= B_0 \left\{ \left[ \pm(-\Delta) + \frac{i\sqrt{1 + 4S}}{T_2} \right]^2 + \frac{1}{T_2^2} \right\}, \\ C_1^\pm &= \frac{2i}{T_2} \left[ \left( \omega_1 + n\Delta - \omega_c + \frac{i}{T_2} \right)^2 + \gamma^2 \right] \left[ \left( \pm\Delta + \frac{i}{T_2} \right)^2 + \frac{1 + 4S}{T_2^2} \right], \\ A_2^\pm &= A_0 [(\omega_c - \omega_1 + i\gamma)^2 - (\pm a + bi)^2], \\ B_2^\pm &= -B_0 \left[ \frac{1 + 4S}{T_2^2} + (\pm a + bi)^2 \right], \\ F_2^\pm &= 2[(\omega_1 - \omega_c \pm a + bi)^2 + \gamma^2] \left[ \frac{1 + 4S}{T_2^2} + (\pm a + bi)^2 \right] [\pm a + bi], \\ A_3^\pm &= A_2^\pm \left\{ [\omega_c - (\omega_1 + n\Delta) + i\gamma]^2 + \frac{1}{T_2^2} \right\}, \\ B_3^\pm &= B_2^\pm \left\{ \left[ \pm(-\Delta) + \frac{i\sqrt{1 + 4S}}{T_2} \right]^2 + \frac{1}{T_2^2} \right\}, \\ C_3^\pm &= C_1^\pm \left[ \left( \pm\Delta + \frac{i}{T_2} \right)^2 - (\pm a + bi)^2 \right], \end{aligned}$$

$$F_3^\pm = F_2^\pm \left\{ [\pm(-\Delta) \pm a + bi]^2 + \frac{1}{T_2^2} \right\};$$

con

$$a + bi = \sqrt{\omega_1^2 - \omega_q^2},$$

y

$$\omega_q^2 = \omega_2\omega_3 + \frac{1}{T_2^2} + \frac{4S(1 + T_1T_2\Delta^2)}{T_2^2(1 + T_1^2\Delta^2)} + \left(\frac{2i\Delta}{T_2}\right) \left[\frac{2S(T_1 - T_2)}{T_2(1 + T_1^2\Delta^2)} - 1\right] = \omega_{qR}^2 + i\omega_{qI}^2,$$

por lo que

$$a = -\frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\omega_{qI}^2}{\sqrt{\omega_{qR}^2 - \omega_1^2 + \sqrt{(\omega_{qR}^2 - \omega_1^2)^2 + (\omega_{qI}^2)^2}}}$$

y

$$b = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\omega_{qR}^2 - \omega_1^2 + \sqrt{(\omega_{qR}^2 - \omega_1^2)^2 + (\omega_{qI}^2)^2}}.$$

### 2.3. Efectos de propagación

Para incluir dentro del modelo los efectos de la propagación espacial sobre los distintos campos durante su recorrido óptico dentro de la celda, se usan las Ecs. (10) para las polarizaciones no-lineales como términos fuente en la ecuación de Maxwell:

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \left( \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} \right) = \frac{4\pi}{c^2} \left( \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \right). \quad (12)$$

Empleando la aproximación escalar y la de la envolvente suave [26,27] y suponiendo que los campos se propagan a lo largo del eje  $z$ , se resuelve esta ecuación para cada uno de los campos, obteniéndose las siguientes expresiones:

$$\frac{d\tilde{E}_1}{dz} = -\alpha_1 \tilde{E}_1 \quad (\text{bombeo}), \quad (13a)$$

$$\frac{d\tilde{E}_2}{dz} = -\alpha_2 \tilde{E}_2 + \xi_2 \tilde{E}_3^* \exp(i\Delta k_z z) \quad (\text{prueba}), \quad (13b)$$

$$\frac{d\tilde{E}_3}{dz} = -\alpha_3 \tilde{E}_3 + \xi_3 \tilde{E}_2^* \exp(i\Delta k_z z) \quad (\text{señal}), \quad (13c)$$

donde  $\tilde{E}_j$  es la envolvente del campo que oscila a la frecuencia  $\omega_j$ ,  $\tilde{E}_j = \frac{E_{0j}}{2} \exp[i\Phi_j]$  con  $j = 1, 2, 3$ , y donde los  $\alpha_j$ , que representan los coeficientes de absorción no-lineales del medio material a la frecuencia  $\omega_j$ , vienen dados por

$$\alpha_1 = \frac{2\pi\omega_1}{c\eta_1} \text{Im} \chi_{\text{ef}}^{(1)}(\omega_1) \quad (\text{para el haz de bombeo}) \quad (14a)$$

y

$$\alpha_j = \frac{2\pi\omega_j}{c\eta_j} \text{Im} [\chi_{\text{ef}}^{\text{coh}}(\omega_j) + \chi_{\text{ef}}^{\text{incoh}}(\omega_j)] \quad (14b)$$

para el haz de prueba ( $j = 2$ ) y para el haz de señal ( $j = 3$ ).

Los coeficientes  $\xi_j$  representan los parámetros de acoplamiento entre los campos de prueba y señal de mezcla de ondas definidos por

$$\xi_j = i \frac{2\pi\omega_j}{c\eta_j} \chi_{\text{ef}}^{\text{acop}}(\omega_j) \tilde{E}_1^2 \quad (j = 2, 3), \quad (15)$$

y  $\Delta k_z$  es la componente  $z$  del vector de defasamiento de ondas:

$$\Delta k_z = 2k_{1z} - k_{2z} - k_{3z} = [2\eta_1\omega_1 - (\eta_2\omega_2 + \eta_3\omega_3) \cos \theta] / c, \quad (16)$$

donde  $\theta$  es el ángulo de separación entre los haces de bombeo y prueba. Los índices de refracción  $\eta_j$  se definen como

$$\eta_1 = \sqrt{\eta_0^2 + 4\pi \text{Re} \chi_{\text{ef}}^{(1)}(\omega_1)} \quad (17a)$$

para el haz de bombeo y

$$\eta_j = \sqrt{\eta_0^2 + 4\pi \text{Re} [\chi_{\text{ef}}^{\text{coh}}(\omega_j) + \chi_{\text{ef}}^{\text{incoh}}(\omega_j)]} \quad (17b)$$

para el haz de prueba ( $j = 2$ ) y la señal ( $j = 3$ ), mientras que el índice de refracción del solvente puro es

$$\eta_0 = \sqrt{1 + 4\pi \text{Re} \chi^{\text{sv}}(\omega_j)} \quad (j = 1, 2, 3). \quad (18)$$

Se observa que las Ecs. (14b) y (17b) para los coeficientes de absorción e índices de refracción de los campos débiles tienen básicamente la misma estructura matemática. Ambos son el resultado de sumar la parte imaginaria (o la parte real) de las contribuciones coherentes e incoherentes de la susceptibilidad no-lineal respectiva (Ecs. (11a) y (11c)). La componente incoherente da cuenta de la reducción de la diferencia de poblaciones a causa de la presencia del bombeo saturante. La parte coherente involucra un proceso de interferencia entre los haces débiles y fuerte, y surge por la presencia de una oscilación de poblaciones a la frecuencia de desintonizamiento  $\Delta$  entre el bombeo y la prueba [28].

De la Ec. (13a) se observa que el haz de bombeo sólo sufre procesos de absorción al pasar a través de la celda que contiene el sistema molecular activo, y puede ser resuelta independientemente de las ecuaciones para los otros dos haces. De aquí, que las posibles ganancias de energía por parte de los haces débiles (prueba y señal) son debidas fundamentalmente a la extracción de energía del medio, cedida a este último por el haz de bombeo. La asimetría matemática de la Ec. (13a) (respecto a las Ecs. (13b) y (13c)) es debida al tratamiento perturbativo de primer orden impuesto a los haces débiles.

La sencillez de estos tratamientos perturbativos en el modelo presentado para los campos, permite la solución analítica de la ecuación de la señal, por ende, una interpretación física más evidente de los procesos de interacción radiación-materia que tienen lugar, expresados en las contribuciones coherentes e incoherentes de las susceptibilidades no-lineales efectivas. Distintos autores han presentado tratamientos perturbativos para los campos electromagnéticos a muy altos órdenes con el uso de técnicas de fracciones continuas. En estos casos, resulta más compleja y menos evidente la interpretación de tales procesos en relación con las expresiones analíticas obtenidas [29].

Si se utiliza la definición para el parámetro de saturación se puede escribir la Ec. (13a) como

$$\frac{dS}{dz} = -2\alpha_1 S. \quad (19)$$

Ésta se puede expresar más detalladamente con el uso de las Ecs. (14a) y (11d) obteniéndose la siguiente expresión:

$$\frac{dS}{dz} = \frac{-\pi N \mu_{ab}^2 \omega_1 T_2 \rho_D^{(0)} \sum_{m=0}^5 \phi_m Y^m}{\hbar c \eta_1 \sum_{m=0}^2 \zeta_m Y^{2m+1}}, \quad (20)$$

con  $Y \equiv \sqrt{1 + 4S}$ . Los coeficientes  $\phi_m$  y  $\zeta_m$  vienen dados por

$$\begin{aligned} \phi_0 &= -\gamma T_2 \tilde{\Delta}_+, & \phi_3 &= -(\tilde{\Delta}_- + 1), & \zeta_0 &= \tilde{\Delta}_+^2, \\ \phi_1 &= \tilde{\Delta}_-, & \phi_4 &= -\gamma T_2, & \zeta_1 &= -2\tilde{\Delta}_-, \\ \phi_2 &= \gamma T_2 (\tilde{\Delta}_+ + 1), & \phi_5 &\equiv 1, & \zeta_2 &\equiv 1, \end{aligned}$$

donde  $\tilde{\Delta}_\pm = T_2^2 [\gamma^2 \pm (\omega_c - \omega_1)^2]$  expresa una medida del ancho inhomogéneo efectivo (adimensional).

Las Ecs. (13b) y (13c) muestran, junto a los coeficientes de absorción, términos de acoplamiento entre ambos haces débiles. Desacoplando estas ecuaciones se obtiene para el haz de señal la siguiente ecuación diferencial:

$$\frac{d^2 \tilde{E}_3}{dz^2} + a_1(z) \frac{d\tilde{E}_3}{dz} + a_2(z) \tilde{E}_3 = 0, \quad (21)$$

donde las funciones  $a_1(z)$  y  $a_2(z)$  están dadas por

$$a_1(z) = \alpha_2 + \alpha_3 - \frac{d \ln \xi_3}{dz} - i \Delta k_z - iz \frac{d \Delta k_z}{dz} \quad (21a)$$

y

$$a_2(z) = \alpha_2 \alpha_3 - \xi_2^* \xi_3 + \frac{d \alpha_3}{dz} - \alpha_3 \left( \frac{d \ln \xi_3}{dz} + i \Delta k_z + iz \frac{d \Delta k_z}{dz} \right). \quad (21b)$$

Estudios con la Ec. (21) han sido previamente realizados por distintos autores [30], mostrando el comportamiento de la señal de mezcla de ondas tipo Rayleigh respecto a distintas variables, incluyendo no sólo la longitud óptica sino además considerando la concentración química de las especies y las frecuencias de los haces incidentes, tanto para líneas homogéneas como inhomogéneas. Estudios recientes han mostrado las distintas posibilidades de tratar la propagación de los campos en fases condensadas, así como la topología inherente a las superficies de señal no-lineal en los distintos espacios de coordenadas que incluyen las frecuencias de los haces incidentes, intensidad de los campos, concentración química de la solución, etc. [31]. Nótese que el conocimiento explícito de la amplitud  $\tilde{E}_3(z)$  requiere del conocimiento de las variaciones en  $z$  de las funciones  $a_1(z)$  y  $a_2(z)$ , dependientes de las funciones  $\alpha_j$ ,  $\xi_j$  y  $\Delta k_z$  ( $j = 2, 3$ ) y de sus derivadas, a su vez función de  $dS/dz$  de la Ec. (20).

Por otra parte, de la definición de los distintos coeficientes y variables que aparecen en las Ecs. (14b), (17b), (11a) y (11c) se observa que la dependencia en  $z$  de las funciones  $\alpha_j$  y  $\eta_j$  viene dada por la dependencia en  $z$  del parámetro de saturación  $S$  [Ec. (20)]. Cuando se supone la validez de la aproximación de la intensidad de bombeo constante los coeficientes de absorción e índice de refracción no muestran dependencia en el camino óptico. En este artículo no empleamos esta aproximación y resolvemos la Ec. (20) de manera exacta [30].

### 3. RESULTADOS

Para estudiar las características absortivas y dispersivas de la señal de mezcla de ondas hemos empleado superficies tri-dimensionales, en el llamado espacio de frecuencias, en donde representamos los distintos coeficientes como función de los desintonizamientos en frecuencia de ambos haces incidentes. Esta representación de los coeficientes de absorción e índices de refracción resulta más adecuada para caracterizar los distintos fenómenos no-lineales que se observan que las curvas bidimensionales convencionalmente utilizadas hasta ahora. En todas las superficies hemos parametrizado los tiempos de relajación suponiendo un valor del cociente  $T_1/T_2 = 10$  con  $T_2$  en el orden de los picosegundos, y hemos utilizado una frecuencia de resonancia con un centro de línea dentro de la región óptica,  $\omega_c \sim 3 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$  (datos que corresponden a soluciones acuosas de colorantes orgánicos como el verde de malaquita). Hemos usado en todas las gráficas una intensidad inicial del haz de bombeo dada por  $S(z = 0) = 2$ , que es un valor lo suficientemente alto para observar

efectos de alto orden en la intensidad de la señal no-lineal, pero lo bastante bajo para invalidar el uso de la aproximación del campo de bombeo constante [18].

En las Figs. 2-11 se han graficado las respuestas absortivas [Ec. (14b)] y dispersivas [Ec. (17b)] de la señal de mezcla de ondas a la frecuencia  $\omega_3$  para distintos valores del ancho inhomogéneo ( $\gamma$ ), la concentración de la solución química ( $N$ ) y el grosor de la celda ( $z$ ). En el lado izquierdo de cada figura se muestran, respectivamente, el coeficiente de absorción  $\alpha_3$  (a), la parte imaginaria de la contribución coherente a la susceptibilidad no-lineal  $\text{Im}[\chi_{\text{ef}}^{\text{coh}}(\omega_3)]$  (b) y la parte imaginaria de la contribución incoherente  $\text{Im}[\chi_{\text{ef}}^{\text{incoh}}(\omega_3)]$  (c). En el lado derecho de cada figura se representan, respectivamente, el índice de refracción  $\eta_3$  (d), la parte real de la contribución coherente de la susceptibilidad no-lineal  $\text{Re}[\chi_{\text{ef}}^{\text{coh}}(\omega_3)]$  (e) y la parte real de la contribución incoherente  $\text{Re}[\chi_{\text{ef}}^{\text{incoh}}(\omega_3)]$  (f). En las Figs. 2-7 el cálculo se hizo para un valor de la concentración del soluto de  $0.5 \times 10^{-3}$  M, y en las Figs. 8-11 la concentración escogida fue  $2.0 \times 10^{-3}$  M. En las Figs. 2, 3, 4, 8 y 9 el valor usado para el semiancho inhomogéneo a la mitad de la altura fue  $\gamma = 1 \times 10^{-4} T_2^{-1}$  (valor que reproduce los resultados para el caso homogéneo puro), y en las Figs. 5, 6, 7, 10 y 11 el ancho inhomogéneo seleccionado fue  $\gamma = 2.0 T_2^{-1}$ . En las Figs. 2 y 5 se utilizó un tamaño de celda de  $1 \times 10^{-4}$  cm (valor que reproduce los resultados del caso local), en las Figs. 3, 6, 8 y 10 se usó un valor de 0.015 cm y en las Figs. 4, 7, 9 y 11 la longitud óptica fue de 0.025 cm.

En general, se observa en todas las superficies denotadas por la letra *b* en estas figuras, que la contribución coherente al coeficiente de absorción de la señal de mezcla de ondas tiene características de absorción negativa o ganancia, ubicadas en la diagonal principal del espacio de frecuencias que corresponde a la condición  $\omega_1 = \omega_2$ . Este pozo coherente es el resultado de la dispersión del campo de bombeo debida a las pulsaciones de población a la frecuencia de desintonizamiento bombeo-prueba. Además es posible observar en todas las figuras (principalmente para la línea homogénea pura, superficies *b* de las Figs. 2, 3, 4, 8 y 9) que junto a esta diagonal de ganancia coherente se encuentran zonas de absorción positivas (formando estructuras como hombreras) debidas a defasamientos fuertes entre la respuesta dipolar y la respuesta de las poblaciones del sistema que se estudia. La contribución coherente al índice de refracción (superficies *e* de las Figs. 2-11) muestran un comportamiento complementario al del coeficiente de absorción (como lo requiere las relaciones Kramers-Kronig), pues muestra un perfil de dispersión invertido con respecto al comportamiento convencional [25].

Cuando se considera la propagación, al aumentar la concentración química la contribución coherente al coeficiente de absorción (o al índice de refracción) muestra un fuerte decaimiento de la ganancia principalmente en la zona de resonancia de los haces (superficies *b* y *e* de las Figs. 8-11). El incremento de la inhomogeneidad espectral atenúa este decaimiento (comparar las superficies *b* y *e* de las Figs. 8 y 9 con las correspondientes superficies de las Figs. 10 y 11). El mismo comportamiento ocurre al disminuir el tamaño de la celda considerada (comparar las superficies *b* y *e* de las Figs. 8 y 9, y de las Figs. 10 y 11).

Por otra parte, la contribución incoherente al coeficiente de absorción muestra, principalmente a concentraciones bajas, una depresión centrada en resonancia que para el caso homogéneo (superficies *c* de las Figs. 2-4) es debida, exclusivamente, a la reducción de la

diferencia de poblaciones por la saturación provocada por el haz de bombeo. Ésta será más fuerte cuando la frecuencia del bombeo coincida con la del centro de la línea homogénea  $\omega_0$ . Sin embargo, cuando consideramos el caso inhomogéneo (superficies c de las Figs. 5-7), la depresión incoherente de la absorción no es sólo debida a la disminución de la diferencia de poblaciones, sino que ocurre también un "quemado de hueco" (*hole burning*) en la línea de absorción inhomogénea (al hacer cortes en el espacio de frecuencia a una frecuencia del bombeo constante, se observa curvas lorentzianas con un hueco centrado en  $\omega_1$ ). Estas características en la absorción incoherente también se reflejan en las correspondientes contribuciones incoherentes de los índices de refracción (superficies f de las Figs. 2-7) al observarse hendiduras en los perfiles dispersivos.

El efecto que un incremento de la concentración química de la solución ejerce sobre la contribución incoherente del coeficiente de absorción e índice de refracción (superficies c y f de las Figs. 8-11), es el de atenuar la depresión central observada a concentraciones menores. Cuando se aumenta el ancho de la línea inhomogénea esta atenuación se hace menor (comparar por ejemplo, las superficies c y f de las Figs. 8 y 10). Lo mismo se observa al disminuir el tamaño de celda (comparar las superficies c y f de las Figs. 10 y 11).

La causa de la atenuación observada en la ganancia coherente del coeficiente de absorción de la señal de mezcla de ondas cuando se aumenta la concentración de la solución química o la longitud de la celda, o se disminuye el ancho inhomogéneo de la línea de absorción, se debe a que esas variaciones producen una disminución de la intensidad del haz de bombeo al incrementarse el número de sistemas de dos niveles capaces de absorberlo. En otras palabras, con los cambios indicados de estas variables pasamos de una condición de saturación (caracterizada por la disminución de la diferencia de poblaciones y por efectos de "quemado de hueco" en la contribución incoherente) a una condición absorbiva (donde el haz de bombeo se absorbe y la generación del proceso de mezcla de cuatro ondas decrece sensiblemente), lo que disminuye la pulsación de poblaciones en la diferencia de frecuencia de los haces incidentes, factor responsable de la ganancia coherente determinada. Esta transición que se observa aquí desde el régimen saturativo a uno absorbivo, ocurre porque empleamos un campo de bombeo que tiene una potencia inicial tal que no cumple con la aproximación de amplitud espacial de bombeo constante.

Como consecuencia de las distintas variaciones en las contribuciones coherentes e incoherentes, el coeficiente de absorción y el índice de refracción para la señal a la frecuencia  $\omega_3$  ven modificadas sus características en el espacio de frecuencias (superficies a y d de las Figs. 2-11). Así se observa que el aumento de la longitud óptica, de la concentración de la solución química y la disminución del ancho de la línea inhomogénea produce una atenuación de la profundidad de la depresión coherente, la que se ve acentuada en la zona de resonancia de ambos haces.

Cuando se aumenta fuertemente la intensidad del haz de bombeo inicial, los efectos de la propagación y de la concentración de la solución química se hacen insignificantes, y las superficies de absorción y dispersión no ven modificadas sus características al modificar ambas variables. En este caso la aproximación de bombeo constante es válida y por tanto  $dS/dz = 0$ . Bajo estas condiciones el régimen es fuertemente saturativo y ocurren resonancias a la frecuencia de Rabi generalizada obteniéndose los llamados "espectros de Mollow", que han sido ampliamente tratados [32,33].

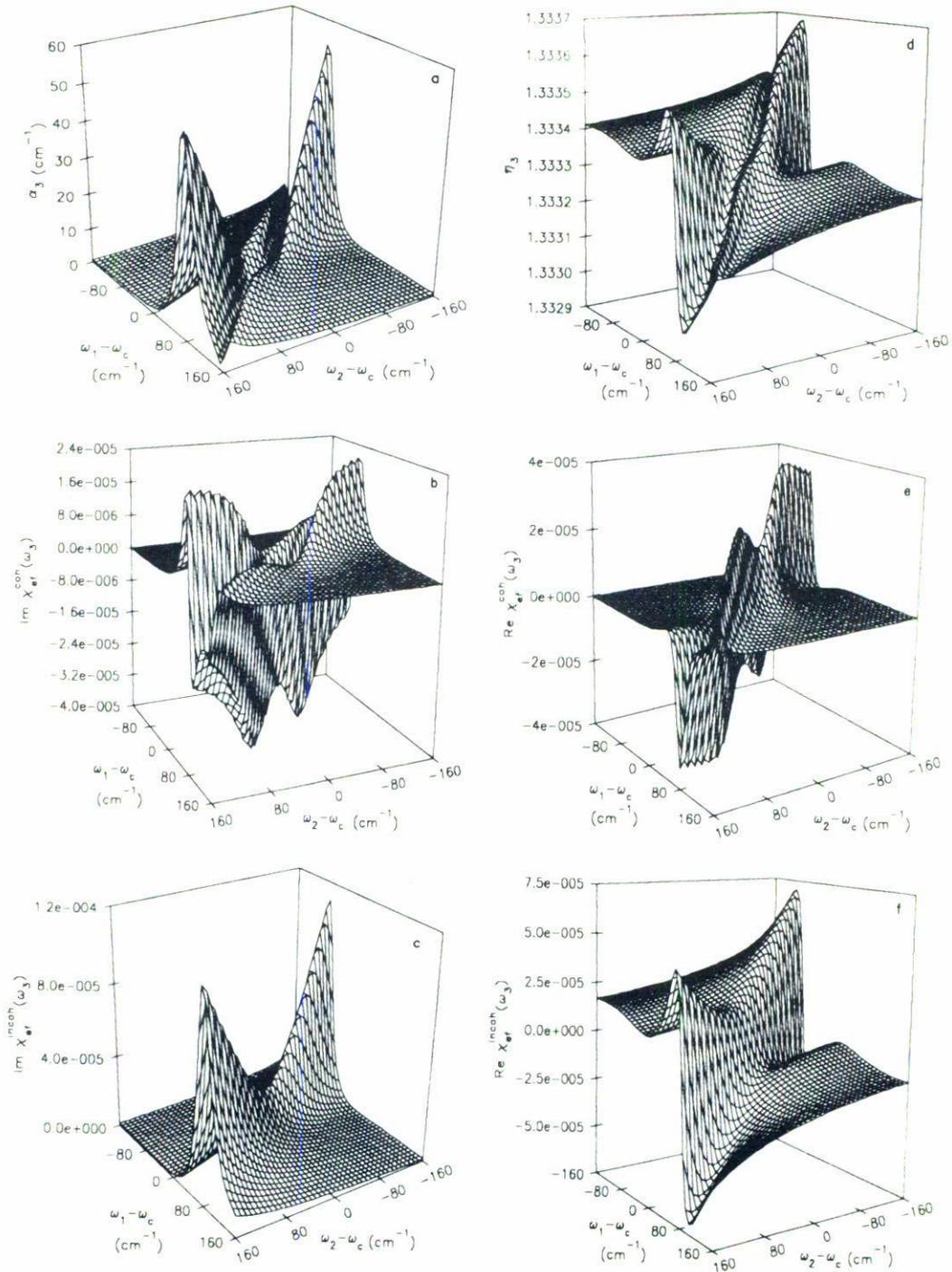


FIGURA 2. Gráficos tridimensionales de las propiedades absorptivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 0.5 \times 10^{-3}$  M;  $\gamma(1/T_2) = 1 \times 10^{-4}$ ;  $z = 1 \times 10^{-4}$  cm (local).

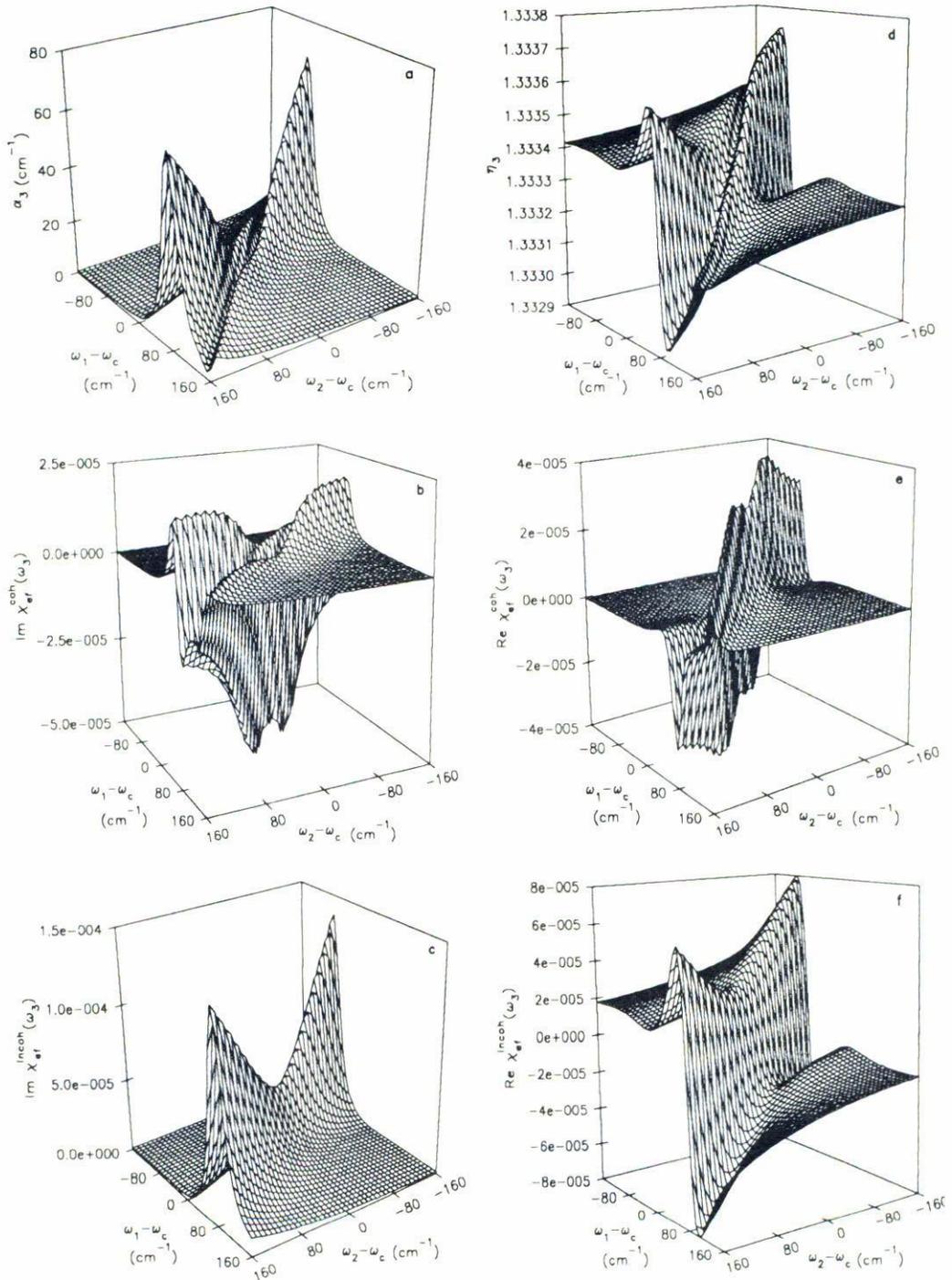


FIGURA 3. Gráficos tridimensionales de las propiedades absorptivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 0.5 \times 10^{-3}$  M;  $\gamma(1/T_2) = 1 \times 10^{-4}$ ;  $z = 0.015$  cm.

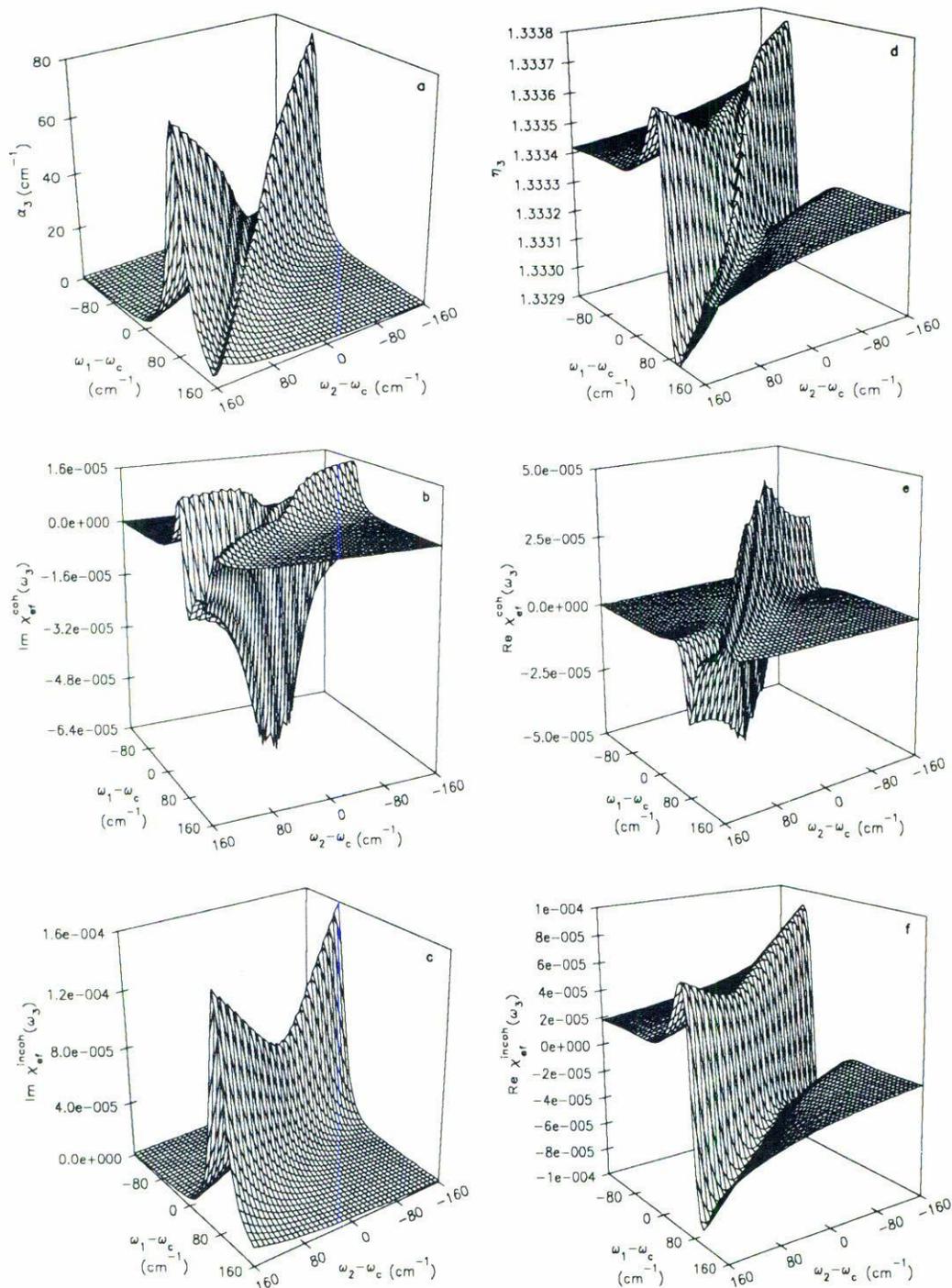


FIGURA 4. Gráficos tridimensionales de las propiedades absorptivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 0.5 \times 10^{-3}$  M;  $\gamma(1/T_2) = 1 \times 10^{-4}$ ;  $z = 0.025$  cm.

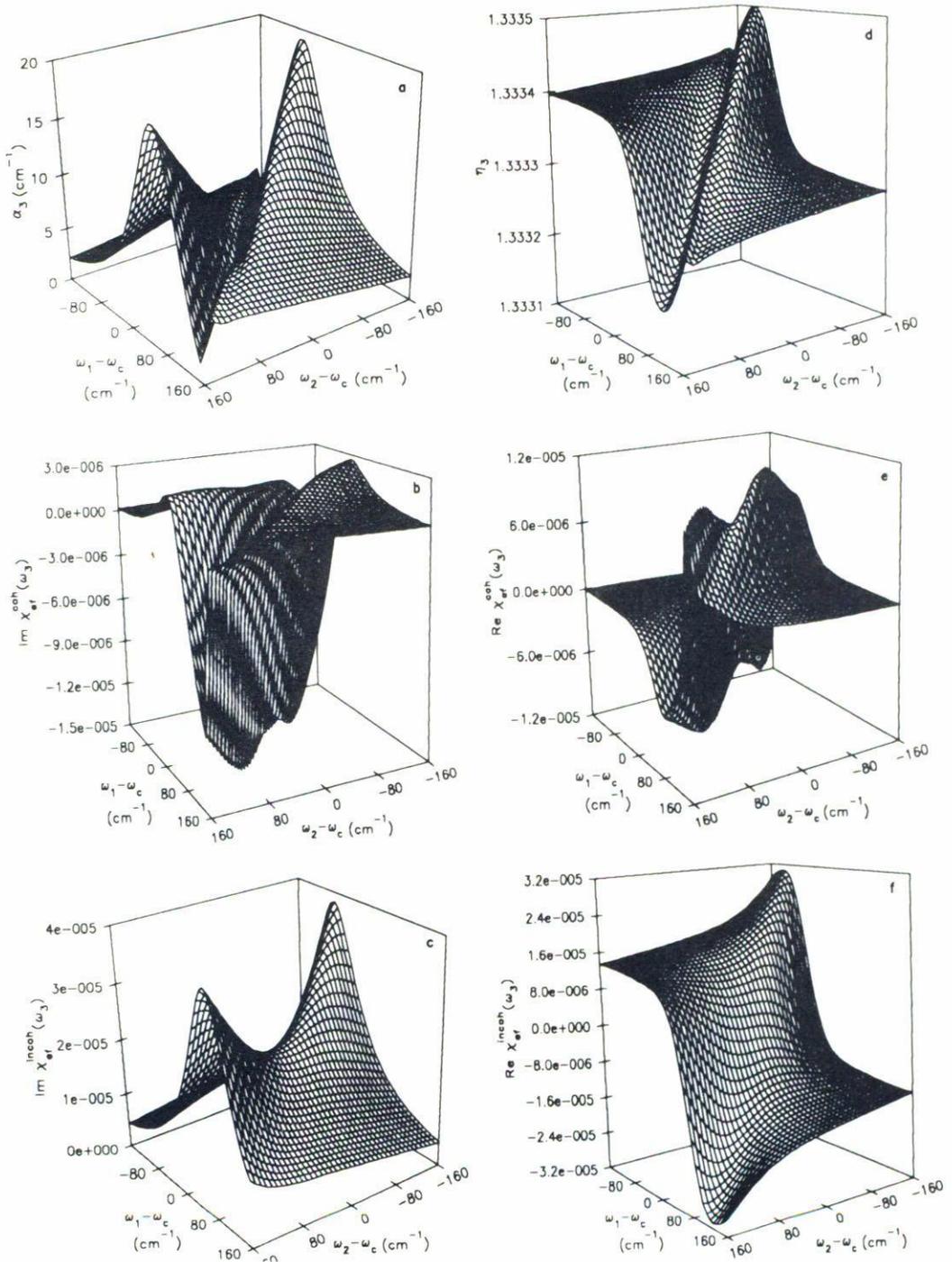


FIGURA 5. Gráficos tridimensionales de las propiedades absorptivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 0.5 \times 10^{-3}$  M;  $\gamma(1/T_2) = 2.0$ ;  $z = 1 \times 10^{-4}$  cm (local).

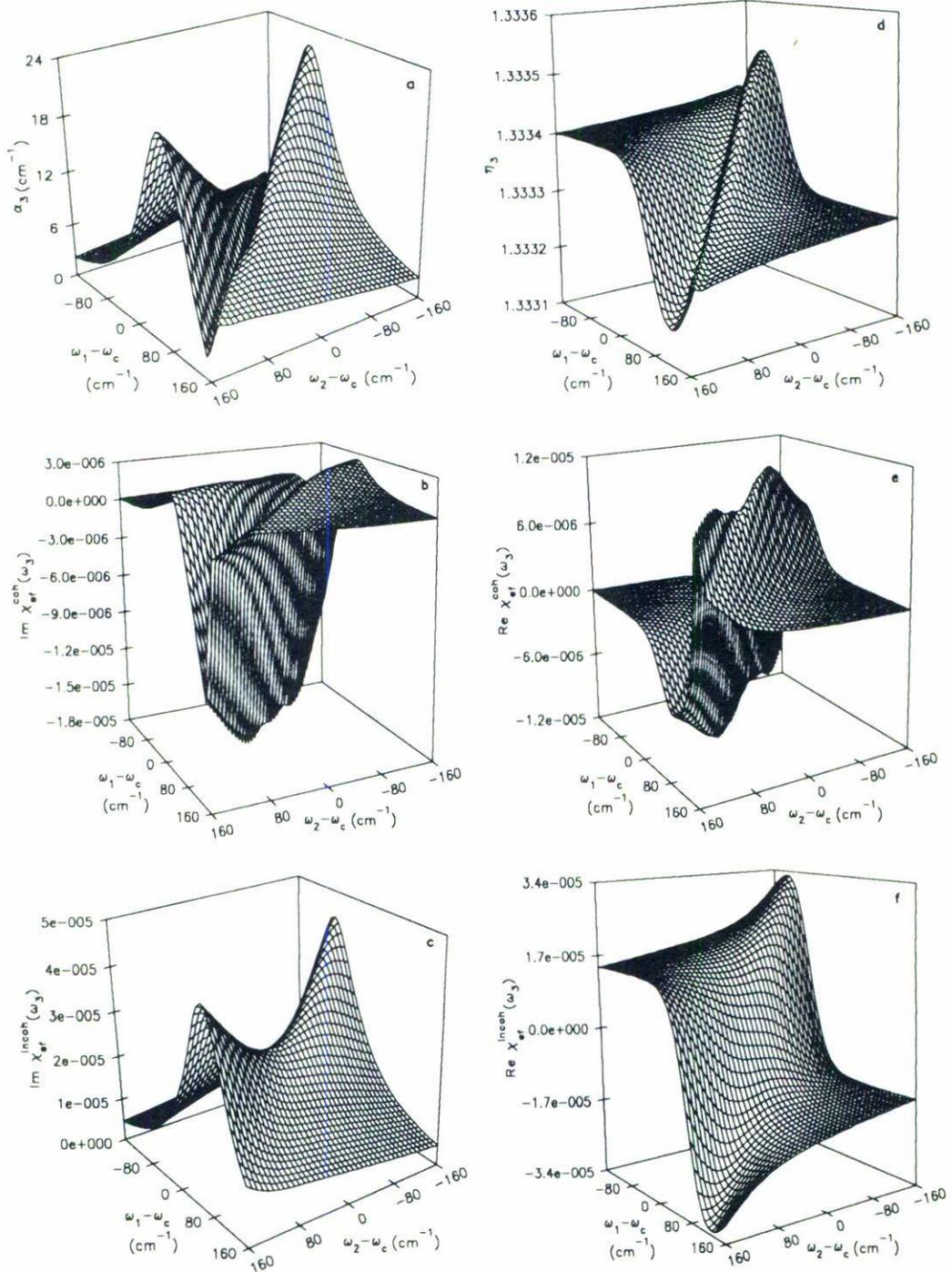


FIGURA 6. Gráficos tridimensionales de las propiedades absortivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 0.5 \times 10^{-3} \text{ M}$ ;  $\gamma(1/T_2) = 2.0$ ;  $z = 0.015 \text{ cm}$ .

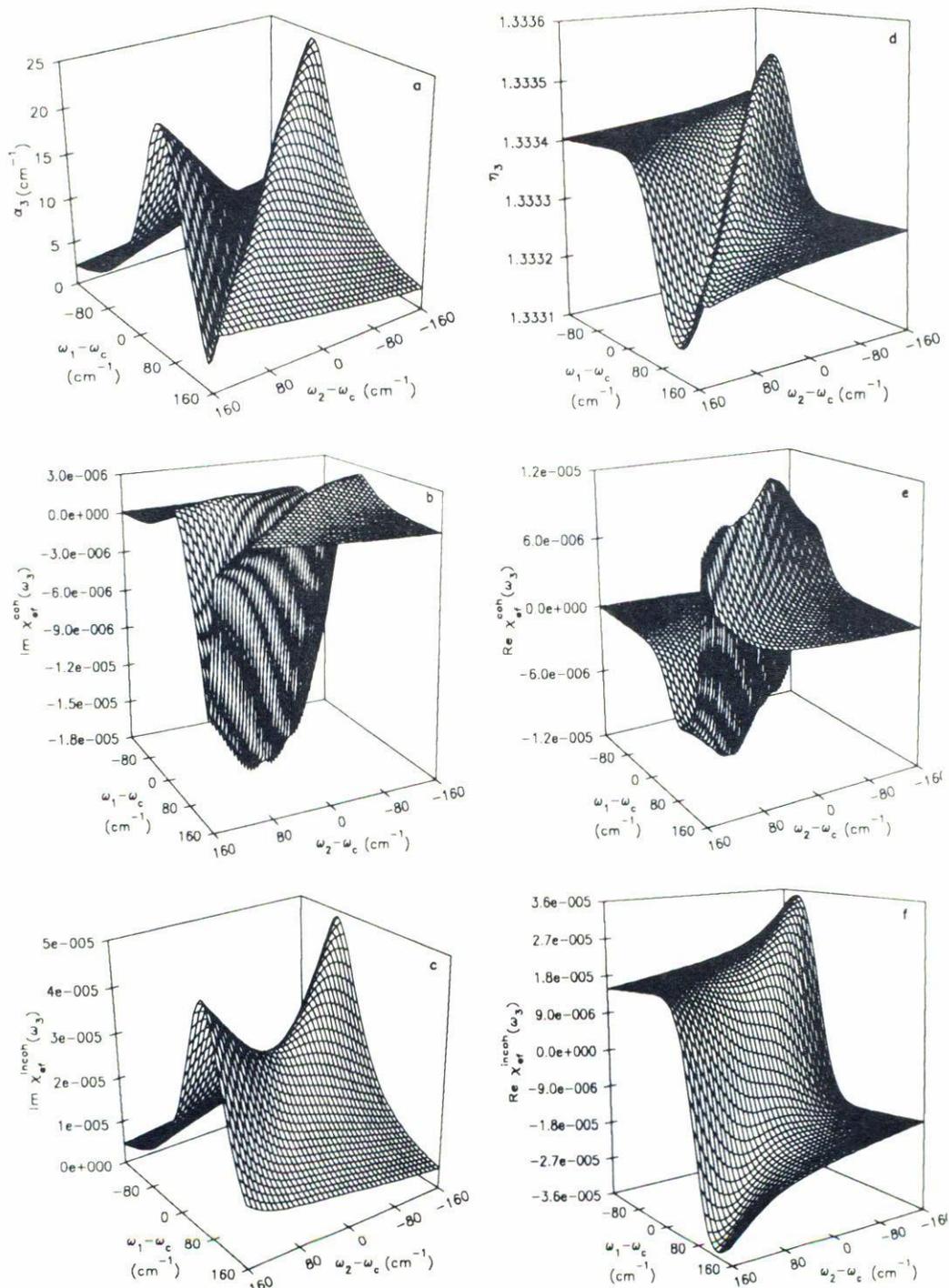


FIGURA 7. Gráficos tridimensionales de las propiedades absorptivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 0.5 \times 10^{-3}$  M;  $\gamma(1/T_2) = 2.0$ ;  $z = 0.025$  cm.

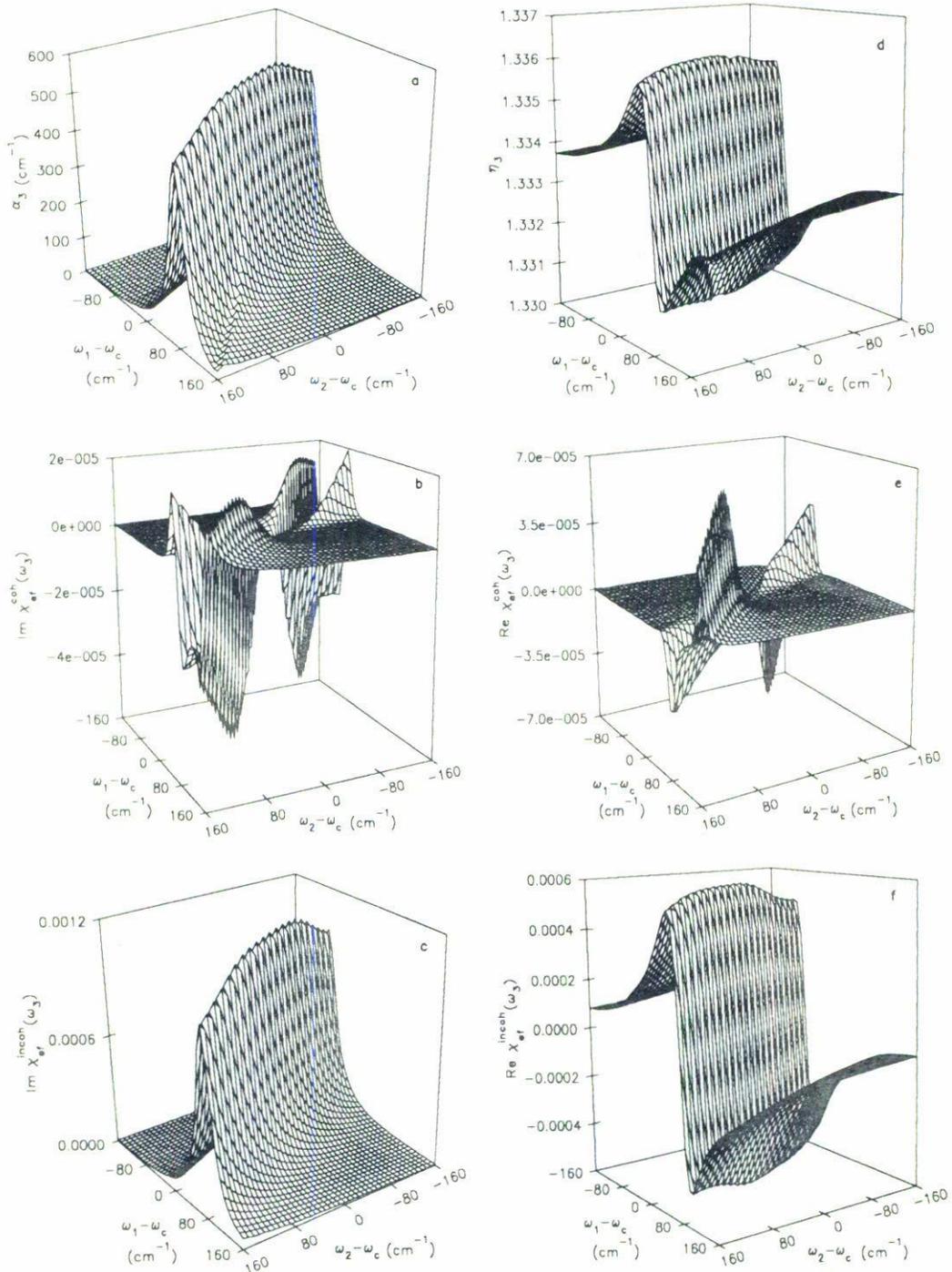


FIGURA 8. Gráficos tridimensionales de las propiedades absortivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 2.0 \times 10^{-3} \text{ M}$ ;  $\gamma(1/T_2) = 1 \times 10^{-4}$ ;  $z = 0.015 \text{ cm}$ .

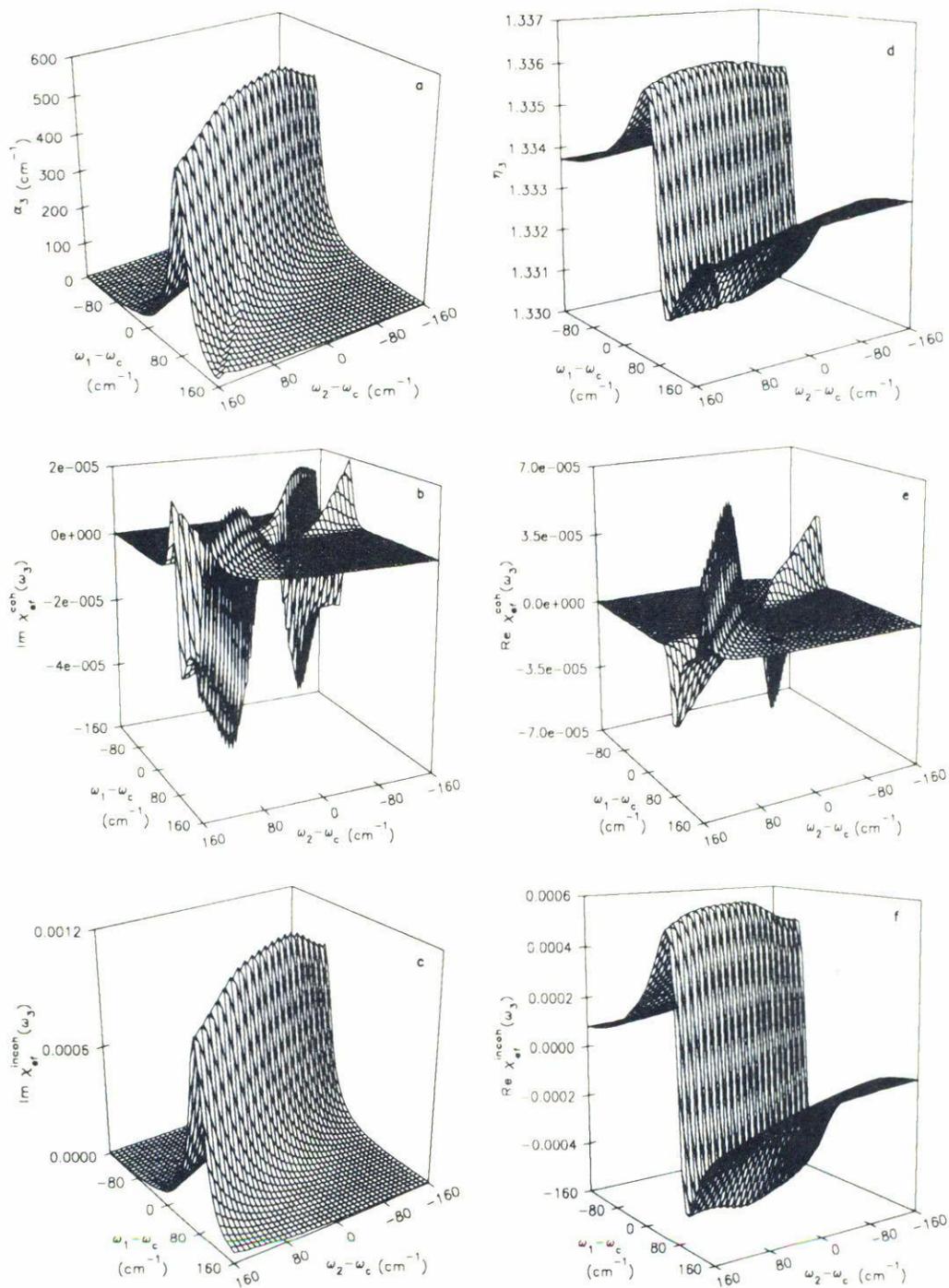


FIGURA 9. Gráficos tridimensionales de las propiedades absorptivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 2.0 \times 10^{-3}$  M;  $\gamma(1/T_2) = 1 \times 10^{-4}$ ;  $z = 0.025$  cm.

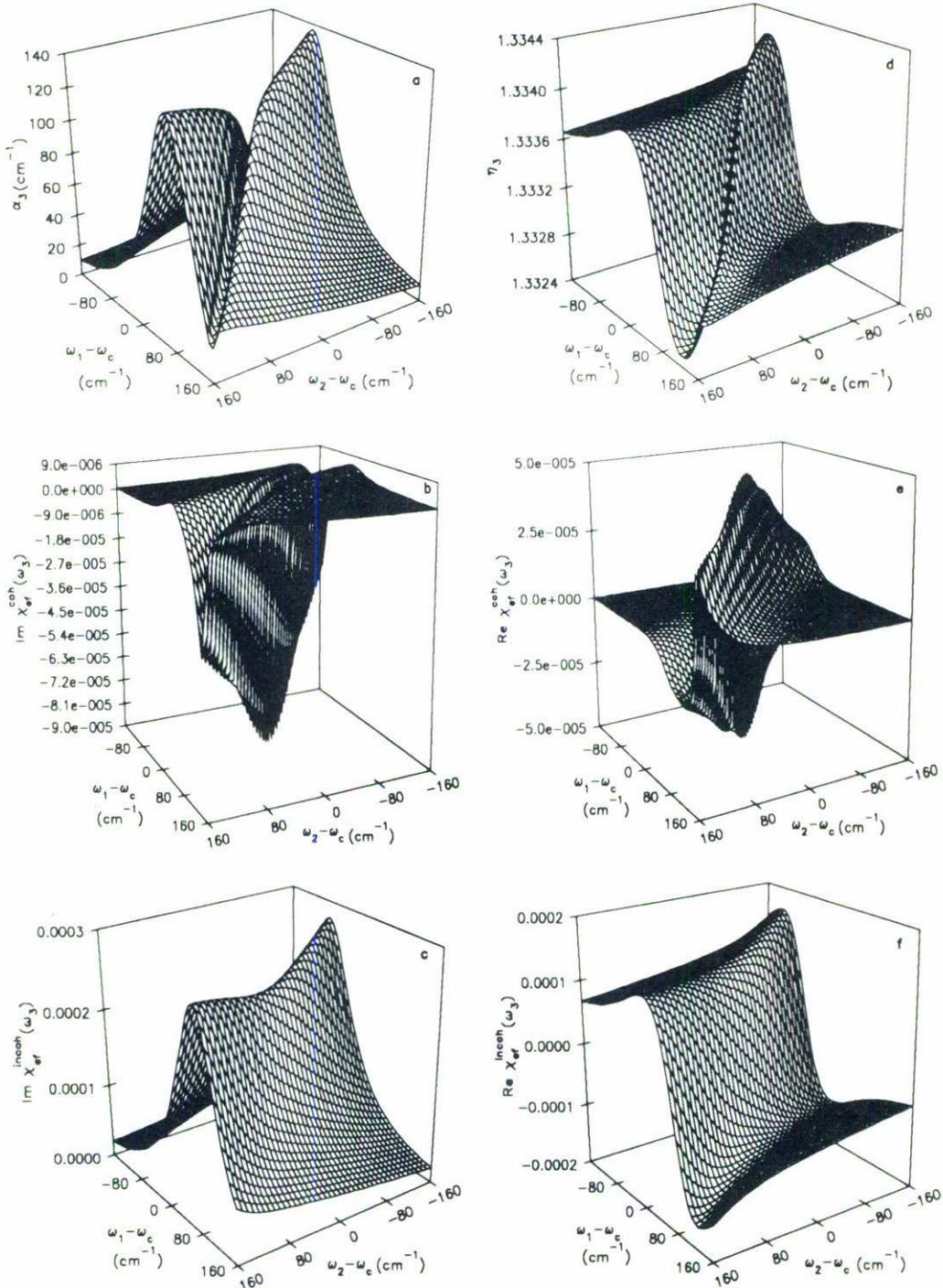


FIGURA 10. Gráficos tridimensionales de las propiedades absortivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 2.0 \times 10^{-3}$  M;  $\gamma(1/T_2) = 2.0$ ;  $z = 0.015$  cm.

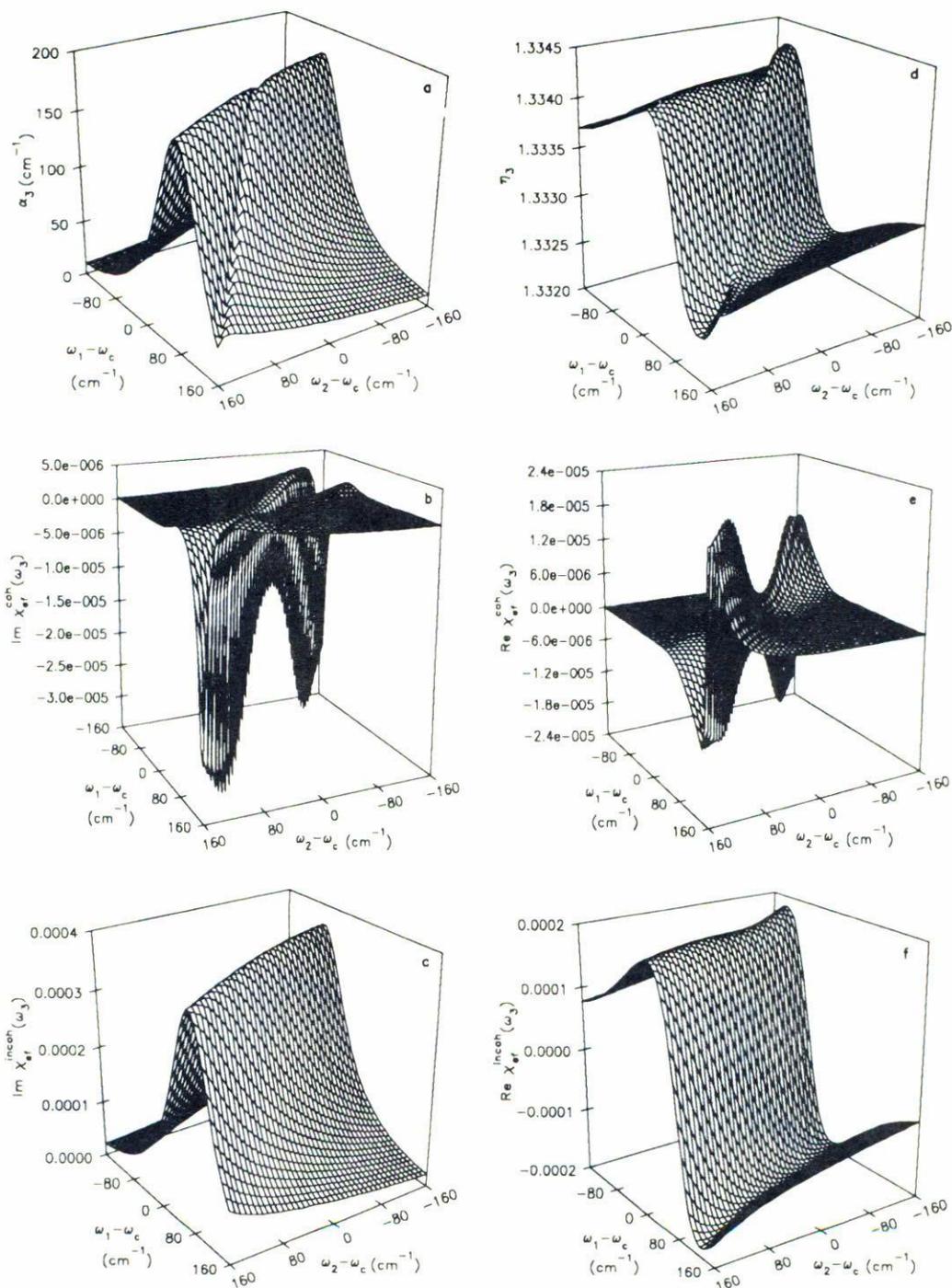


FIGURA 11. Gráficos tridimensionales de las propiedades absorptivas y dispersivas para la señal MOTR en el espacio de frecuencias para las siguientes condiciones:  $N = 2.0 \times 10^{-3}$  M;  $\gamma(1/T_2) = 2.0$ ;  $z = 0.025$  cm.

#### 4. CONCLUSIONES

En el presente artículo hemos mostrado que las oscilaciones de población a la frecuencia de desintonizamiento bombeo-prueba, responsables de la aparición de los pozos de ganancia coherente, son notablemente influenciadas por los efectos de propagación de los campos, la concentración química del material activo y la magnitud del ensanchamiento inhomogéneo de la línea de absorción espectral. Estos cambios inciden igualmente en las características de las respuestas absortivas y dispersivas de la señal de mezcla de cuatro ondas resonantes no-degeneradas analizadas en este trabajo. El hecho de haber prescindido de la aproximación de la amplitud espacial constante para el haz de bombeo, ha sido muy importante para encontrar este comportamiento variable del coeficiente de absorción y del índice de refracción de la señal no-lineal estudiada.

La manera de estudiar la topología de las propiedades absortivas y dispersivas de esta señal no-lineal en el espacio de frecuencias sujetas a las parametrizaciones indicadas en cada caso, permite abordar el efecto conjunto de las distintas variables de manera más general, que los cortes de superficies bidimensionales tradicionalmente presentados.

#### AGRADECIMIENTOS

Este trabajo fue financiado por el Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Tecnológicas (CONICIT) (proyecto S1-2238) y por el Decanato de Investigaciones de la Universidad Simón Bolívar (proyecto S1-CB-314). Los autores agradecen al Sr. Michele Milo por su trabajo técnico. Uno de los autores (JLP) agradece al Laboratorio de Química Computacional de la Escuela de Química de la Universidad Central de Venezuela.

#### REFERENCIAS

1. Robert W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, San Diego (1992).
2. Y.R. Shen, *Principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons, New York (1984).
3. C. Schmidt-Iglesias, L. Roso y R. Corbalan, *Opt. Lett.* **15** (1990) 63.
4. A. Marcano O., M.L. Marquez, L. Aranguren y M.C. Salazar, *J. Opt. Soc. Am.* **B7** (1990) 2145.
5. A. Marcano O. y F. García-Golding, *J. Chem. Phys.* **82** (1985) 1242.
6. G. Vemuri, G.S. Agarwal, R. Roy, M.H. Anderson, J. Cooper y S.J. Smith, *Phys. Rev.* **A44** (1991) 6009.
7. D.R. Meacher, D.G.R. Smith, P. Ewart y J. Cooper, *Phys. Rev.* **A46** (1992) 2718.
8. J.P. Lavoine y A. Hadjiagapiou, *Z. Physik* **B86** (1992) 465.
9. T. Yajima y H. Souma, *Phys. Rev.* **A17** (1978) 309.
10. F. García-Golding y A. Marcano O., *Phys. Rev.* **A32** (1985) 1526.
11. J.L. Paz, H.J. Franco, I. Reif, F. García-Golding y A. Marcano O., *Phys. Rev.* **A37** (1988) 3381.
12. H. Souma, E.J. Heilweil y R.M. Hochstrasser, *J. Chem. Phys.* **76** (1982) 5693.
13. M.L. Marquez, I. Reif, H.J. Franco, A. Marcano O. y J.L. Paz, *Phys. Rev.* **A47** (1993) 4185.
14. I. Reif, F. García-Golding, J.L. Paz y H.J. Franco, *J. Opt. Soc. Am.* **B8** (1991) 2470.
15. W. Wang y E. Wolf, *J. of Mod. Opt.* **39** (1992) 2007.
16. H.J. Franco, J.L. Paz, I. Reif, A. Marcano O. y M.C. Salazar, *J. Opt. Soc. Am.* **B7** (1990) 57.

17. A. Marcano O., I. Reif, J.L. Paz y H.J. Franco, *J. of Phys.* **B23** (1990) 1257.
18. R.W. Boyd, M.G. Raymer, P. Narum, D.J. Harter, *Phys. Rev.* **A24** (1981) 411.
19. T. Yajima, H. Souma e Y. Ishida, *Phys. Rev.* **A17** (1978) 324.
20. Karl Blum, *Density matrix theory and applications*, Plenum Press, New York (1981).
21. I. Schek, M.L. Sage and J. Jortner, *Chem. Phys. Lett.* **63** (1979) 230.
22. M.A. Kmetc y W.J. Meath, *Phys. Rev.* **A41** (1990) 1556.
23. N. Bloembergen, *Rev. of Mod. Phys.* **54** (1982) 685.
24. M. Sargent III, *Phys. Rep.* **C43** (1978) 223.
25. P. Meystre y M. Sargent III, *Elements of Quantum Optics*, Springer-Verlag, Berlin (1991).
26. H.J.W.M. Hoekstra, G.J.M. Krijnen y P.V. Lambeck, *Opt. Commun.* **97** (1993) 301.
27. H.J.W.M. Hoekstra, G.J.M. Krijnen y P.V. Lambeck, *Opt. Commun.* **94** (1992) 506.
28. R.W. Boyd y M. Sargent III, *J. Opt. Soc. Am.* **B5** (1988) 99.
29. G.S. Agarwal y N. Nayak, *Phys. Rev.* **A33** (1986) 391.
30. J.L. Paz, A.E. Cárdenas, A.J. Hernández y H.J. Franco, *Opt. Commun.* (1993) (en prensa).
31. J.L. Paz, A.E. Cárdenas, A.J. Hernández, *Quant. Opt.* (1993) (en prensa).
32. B.R. Mollow, *Phys. Rev.* **A5** (1972) 2217.
33. G. Grinberg y C. Cohen-Tannoudji, *Opt. Commun.* **96** (1993) 150.