

**CENTRO DE INVESTIGACION CIENTIFICA Y DE EDUCACION
SUPERIOR DE ENSENADA, BAJA CALIFORNIA**



**PROGRAMA DE POSGRADO EN CIENCIAS
EN CIENCIAS EN ÓPTICA**

**Análisis del enfoque espectral con suma de frecuencias
ópticas utilizando una sola fuente de femto-segundos**

Tesis

para cubrir parcialmente los requisitos necesarios para obtener el grado de
Maestro en Ciencias

Presenta:

Carlos Alfonso Méndez Pfeiffer

Ensenada, Baja California, México
2014

Tesis defendida por
Carlos Alfonso Méndez Pfeiffer
y aprobada por el siguiente Comité

Dr. Israel Rocha Mendoza
Director del Comité

Dr. Santiago Camacho López
Miembro del Comité

Dr. Víctor Ruiz Cortés
Miembro del Comité

Dra. Karina Garay Palmett
Miembro del Comité

Dra. Rosa Reyna. Mouriño Pérez
Miembro del Comité

Dr. Pedro Negrete Regagnon
Coordinador
Programa de Posgrado en Óptica

Dr. Jesús Favela Vara
Director
Dirección de Estudios de Posgrado

Octubre, 2014

Resumen de la tesis de Carlos Alfonso Méndez Pfeiffer, presentada como requisito parcial para la obtención del grado de Maestro en Ciencias en Óptica con orientación en Optoelectrónica.

Análisis del enfoque espectral con suma de frecuencias ópticas utilizando una sola fuente de femto-segundos

Resumen elaborado por:

Carlos Alfonso Méndez Pfeiffer

La biofotónica es un área de investigación relativamente nueva que ha tenido un gran progreso en tan solo dos décadas, con la introducción de nuevas técnicas fotónicas en microbiología y biomedicina. Particularmente para el estudio y la manipulación de sistemas microscópicos tales como las macro moléculas, las células y el tejido biológico (Prasad, 2003). En esta tesis se llevó a cabo una investigación para implementar y caracterizar la técnica de enfoque espectral utilizando el proceso de generación de suma de frecuencias ópticas. Dicha técnica de enfoque espectral es el paso intermedio requerido para desarrollar micro-espectroscopía óptica no lineal de esparcimiento Raman estimulado conocida como CARS (Esparcimiento Raman Anti-Stokes Coherente); técnica de imagen de gran interés por su capacidad de obtener información de contraste molecular sin marcaje fluorescente.

La técnica de enfoque espectral consiste en dilatar temporalmente dos pulsos de femto-segundos de diferente frecuencia, propagándolos a través de ventanas ópticas de alta dispersión de velocidad de grupo. Con ello se modula linealmente el contenido espectral de ambos haces a lo largo de la duración temporal de los pulsos (técnica conocida como “chirp”). El “enfoque” se obtiene al concentrar, mediante un traslape espacio-temporal, la energía de los dos espectros modulados de manera tal que la diferencia entre sus frecuencias ópticas es constante en el tiempo de traslape. Excitando única y exclusivamente una frecuencia de vibración molecular Raman. Dicha excitación coherente es instantánea y más eficiente comparada con la excitación Raman espontánea. Dando como resultado la posibilidad de tomar imágenes Raman en tiempo real.

La ventaja particular del enfoque espectral presentado en este trabajo es el uso de una sola fuente láser de pulsos ultracortos en el régimen femto-segundos (fs) con un contenido espectral ancho (>100 nm), el cual se divide ópticamente para obtener los dos haces requeridos. Asimismo, la caracterización de esta técnica utilizando el proceso de suma de frecuencias ópticas, y no la diferencia (como comúnmente se utiliza), es una contribución original de este estudio. Resultando ser más sencilla experimentalmente pero con ciertas dificultades de interpretación teórica las cuales se discuten en este trabajo de tesis.

Palabras Clave: Chirp, Generación de Suma de Frecuencias, Óptica No Lineal

Abstract of the thesis presented by Carlos Alfonso Méndez Pfeiffer, as a partial requirement to obtain the Master in Science degree in Optics with orientation in Optoelectronics.

Analysis of spectral focusing using optical sum frequency generation with a single femto-seconds laser

Abstract by:

Carlos Alfonso Méndez Pfeiffer

Bio photonics is a new research area having an enormous and rapid progress in the last two decades, involving the development and application of new photonic techniques in biology and biomedicine; in particular, for the study and manipulation of microscopic systems, such as macro molecules, cells and biologic tissue (Prasad, 2003). In this thesis an experimental research work to implement and characterize the spectral focusing technique using nonlinear optical sum frequency generation is presented. This technique is a preliminary step to implement nonlinear stimulated Raman scattering micro-spectroscopy technique known as CARS (Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy); an attractive technique due to its ability to obtain molecular contrast without the need of fluorescent markers.

Spectral focusing consists on pulse stretching two different frequency femto-second pulses using high group velocity dispersion glass windows. In order to modulate linearly the spectral content of both pulses along the pulse duration (technique known as chirp). By overlapping spatially and temporally the energy of the two chirped pulses produce a constant difference frequency during the time overlap of both pulses. In that way the energy of both pulses is focused to excite exclusively one vibrational Raman frequency, and resulting in a more efficient Raman excitation if compared with the spontaneous Raman excitation. The end result is the possibility of taking molecular contrast (Raman) imaging in real time.

The main advantage of spectral focusing shown in this thesis is the use of a single femto-second laser source with a wide spectral content (>100 nm), in order to obtain the two beams required by using passive optical filters. It is important to remark that the characterization of this technique using sum of optic frequencies (and not the difference) is an original contribution of this study, resulting simpler experimentally but with some difficulties in the theoretical interpretation which are discussed in this thesis.

Keywords: Chirp, Sum Frequency Generation, Nonlinear Optics

Dedicatoria

A mi madre por su ejemplo, amor y confianza.

A mis abuelos quienes me cuidaron, criaron como un hijo y junto con mi madre les debo quien soy.

Agradecimientos

-Agradezco especialmente al Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACyT) quien me brindó el apoyo económico para realizar mis estudios de Maestría.

-Agradezco a mi asesor, el Dr. Israel Rocha Mendoza por su invaluable guía y ayuda en éste trabajo de tesis y por sus consejos que me ayudaron en mi formación académica.

-Agradezco al Dr. Jacob Licea Rodríguez por su amistad, apoyo y guía en éste trabajo.

-Agradezco la paciencia, consejos, retroalimentación y facilidad en el uso del laboratorio y/o equipos de mis sinodales: La Dra Karina Palmett, Dra. Rosa Reyna Mouriño Pérez, el Dr. Santiago Camacho López y el Dr. Víctor Ruiz Cortes.

-Agradezco a todos los docentes que compartieron su conocimiento conmigo a través de sus cursos.

Tabla de contenido

	Página
Resumen español	i
Resumen inglés	ii
Dedicatorias	iii
Agradecimientos	iv
Lista de Figuras	vii
Capítulo 1. Introducción y motivación	
1.1 Sobre la espectroscopía CARS	4
1.2 Antecedentes a esta tesis	6
1.3 Objetivos	7
1.4 Estructura de la tesis.....	8
Capítulo 2. Fundamentos Teóricos	
2.1 Dispersión y dispersión de velocidad de grupo de un material	10
2.2 Pulsos láser ultra cortos	12
2.2.1 Generación de pulsos ultra cortos	14
2.2.2 Características de los pulsos ultracortos	17
2.3 Ensanchamiento de pulsos ultracortos por modulación temporal del espectro (chirp).....	18
2.3.1 Igualación del chirp en pulsos ultracortos diferentes	21
2.4 Óptica no lineal de segundo orden.....	23
2.4.1 Generación de Suma de Frecuencias	24
2.4.2 Generación de Segundo Armónico.....	26
2.4.3 Empatamiento de fases y no linealidad tipo I	26
Capítulo 3. Enfoque espectral	
3.1 ¿Qué se entiende por enfoque espectral?	29
3.2 Procesos ópticos no lineales con enfoque espectral.....	31
3.3 Modelo simple para el enfoque espectral.....	33
3. 4 Modelo de Fourier del enfoque espectral	34
Capítulo 4. Materiales y Métodos	
4.1 Materiales y equipo principal.....	38

Tabla de contenido (continuación)

4.1.1 Bloques de material dispersivo	38
4.1.2 Cristal de BBO	40
4.1.3 Láser de Titanio:Zafiro	41
4.1.4 Espectro-fotómetro	41
4.2 Métodos de medición y programación	41
4.2.1 Medición de auto-correlación y caracterización de los vidrios de alta DVG	41
4.2.3 Programación para simular el enfoque espectral	44
4.3 Arreglo experimental	45
4.3.1 Ensanchamiento temporal de los pulsos	46
4.3.2 División espectral de los pulsos.....	46
4.3.3 Obtención de la suma de frecuencias ópticas	48
Capítulo 5. Resultados y discusiones	
5.1 Caracterización de los vidrios de alta DVG	49
5.2 División espectral de los pulsos	51
5.3 Ensanchamiento temporal de los pulsos de bombeo y Stokes	53
5.4 Generación de segundo armónico y suma de frecuencias	55
5.5 Análisis del enfoque espectral utilizando GSF	58
5.5.1 Resultados experimentales	58
5.5.2 Resultados de simulación teórica con el modelo de frecuencias instantáneas	61
5.5.3 Resultados de simulación teórica con el modelo de Fourier.....	62
Capítulo 6. Conclusiones	
6.1 En cuanto a la caracterización del vidrio	65
6.2 En cuanto a la división del contenido espectral de los pulsos láser	66
6.3 En cuanto al estudio del enfoque espectral suma de frecuencias.....	66
6.4 Trabajo a futuro.....	67
Lista de referencias.....	68

Lista de figuras

Figura	Página
1 Diagrama de energía de cars . (a) contribución resonante, (b) contribución no resonante, (c) contribución no resonante de dos fotones.....	6
2 Esquema representando la generación de trenes de pulsos ultracortos.....	15
3 a) Configuración de dispersión negativa con dos prismas. b), evolución temporal de la potencia óptica y de las pérdidas en un láser de mode-lock pasivo.....	16
4 Esquema de ensanchamiento temporal por vidrio de alta dvg. a), pulso ultra corto con su contenido de frecuencias modulado en un tiempo T0. b), pulso ensanchado temporalmente con su frecuencia instantanea modulada en tiempo TL.....	19
5 Simulación de los parámetros $\beta(z)$ y $T(Z)$	22
6 Generación de suma de frecuencias. (a) ilustración geométrica; (b) conservación de momento, (c) conservación de energía en (c).	24
7 Relación entre enfoque espectral y resolución espectral.....	30
8 Esquema para explicar el enfoque espectral, a) interacción de dos pulsos sin chirp, b) enfoque espectral en dfi cuando el ancho de los pulsos es igual, c) enfoque espectral en sfi cuando la cantidad de chirp en ambos pulsos es diferente....	32
9 Esquema para explicar el modelo de fourier para el enfoque espectral. Se muestra la interacción espacio-temporal de los campos de bombeo y stokes, los cuales están modulados a lo largo de la propagación el enfoque siendo máxima en el plano focal.....	35
10 Diagrama de abbe para la dispersión de vidrios.....	39
11 Juego de cinco barras de vidrio sf57 fabricadas en cicese, con superficies de entrada y salida de $1 \times 1 \text{cm}^2$ y longitudes de 8cm, 4cm y 2cm utilizadas en el experimento.....	40
12 Esquema del auto-correlador por absorción de dos fotones en un led.....	42
13 Curva de calibración del auto-correlador.....	43
14 Arreglo experimental implementado para caracterizar el enfoque espectral con suma de frecuencias (sfg).....	45

Lista de figuras (continuación)

- 15 Caracterización de blocks de vidrios de alta dvg. (a) ensanchamiento temporal dependiente de la longitud del pulso obtenido experimentalmente (cuadrados abiertos) y simulando en diferentes tipos de vidrio (sf6, sf11 ysf57). (b) ancho temporal mínimo y máximo obtenido sin y con la longitud máxima de vidrio, respectivamente. (c) espectro del láser utilizado para la caracterización del vidrio.....50
- 16 División espectral del haz de pulsos ultra cortos con ancho espectral amplio. Las figuras (a) y (b) muestran dos ejemplos de la división espectral obtenida en los experimentos.....52
- 17 (a) Ensanchamiento temporal de los pulsos de bombeo y stokes. Trazas de auto-correlación mínima y máxima obtenidas sin material dispersivo (b) y con material dispersivo (c).54
- 18 a) Suma de intensidades de los espectros de bombeo y stokes, utilizados en experimentos de gsa y gsf. (b) señal de segundo armónico del haz de bombeo (762 nm) en función de la potencia de entrada. (c) señal de segundo armónico del haz de stokes (810 nm) en función de la potencia de entrada.....56
- 19 (a) Señal de suma de frecuencias en función de la potencia de entrada. (b) dependencia de segundo orden del fenómeno de generación de segundo armónico y suma de frecuencias.....57
- 20 Efecto del enfoque espectral en la suma de frecuencias, a)espectro fuente, b) segundo armónico y suma de frecuencias sin vidrio dispersivo, c) suma de frecuencias con vidrio dispersivo.....58
- 21 Efecto del enfoque espectral en la gsf. (a) espectros de gsf para 3 longitudes de vidrio. (b) ancho espectral de gsf en función de la longitud de vidrio.....60
- 22 Modelo del enfoque espectral en base a las frecuencias instantáneas. Ancho espectral de la gsfi (a) y para la gdfi (b) para el caso de igual chirp (rojo) e igual longitud de vidrio (negro).....61
- 23 Comparación del modelo teórico de fourier del enfoque espectral con los datos experimentales. a) resultados teóricos del ancho espectral de la gsf en función de la longitud de vidrio y de la N.A. b) caso experimental del inciso a). c) resultados teóricos centrados a partir de 15cm de vidrio. d) caso experimental del inciso c donde se resalta el efecto del enfoque espectral.....63

Capítulo 1. Introducción y motivación

Estudiar y comprender los mecanismos de función interna y propiedades moleculares de microorganismos vivos (células, bacterias, hongos, etc.), al igual que los mecanismos de enlace y organización de proteínas fibrosas que forman el tejido conectivo (colágeno, tubulina, elastina, etc.) han sido por décadas temas de gran interés en biología y medicina. Para llevar a cabo estos estudios se han utilizado técnicas de microscopía y espectroscopía de alta resolución espacial y espectral, tales como la microscopía electrónica, la microscopía confocal y la espectroscopía Raman, por mencionar algunos. De estas técnicas en particular, la microscopía confocal de barrido láser ha sido hasta estos días, sin duda alguna, la técnica de imagen preferida por investigadores en ciencias de la vida. Esto se debe en gran parte por su capacidad de adquirir imágenes “tomográficas” de adquisición rápida capas de monitorear procesos en organismos microscópicos y sistemas celulares, con alta resolución espacial. Asimismo, el uso de marcadores con proteínas fluorescentes ha potencializado su uso para estudiar por ejemplo la dinámica celular (Tsien, 1998).

Sin embargo, la microscopía electrónica, la microscopía confocal y la espectroscopía Raman, poseen una desventaja en común, la de ser técnicas destructivas y/o invasivas. Las primeras dos requieren de una preparación previa de la muestra para su visualización; preparación que puede ser un proceso de fijado y/o el ya mencionado uso de marcadores fluorescentes, dejando en duda su influencia sobre el organismo vivo y por ende una interpretación de los resultados finales libres de agentes externos. Para el tercer caso, la técnica de espectroscopía Raman espontáneo, generalmente se necesita irradiar la muestra con un láser de alta potencia para garantizar la generación de señal (por fluorescencia inducida o por esparcimiento Raman) lo cual produce daños irreversibles en la muestra o bien necesita un tiempo de integración muy grande (decenas de segundos o incluso decenas de minutos) para poder tomar un simple espectro; lo cual hace imposible la toma de imágenes “en tiempo real” para visualizar la dinámica de un microorganismo

que se mueve algunos cuantos micrómetros por segundo. Por lo tanto, existe una necesidad de desarrollar técnicas micro-espectroscópicas que no destruyan o invadan la muestra biológica en cuestión durante su observación.

En este contexto, gracias al gran avance en las dos últimas décadas tanto en el diseño y producción de fuentes láser de pulsos ultracortos, aunado con la experiencia previa y el constante progreso de las técnicas de barrido láser, y de diversas técnicas de microscopía avanzada que utilizan fuentes de excitación láser han surgido y evolucionado junto con esta tecnología. Un caso particular es el desarrollo de la microscopía no lineal, también conocida como microscopía de multi-fotones (MPM, por sus siglas en inglés) (Raub, y otros, 2007). Este tipo de microscopía utiliza precisamente fuentes de luz láser de pulsos ultracortos con longitudes de onda en el infrarrojo cercano para generar (mediante procesos ópticos no-lineales) luz en el visible, únicamente en el plano de enfoque de la muestra. La ventaja principal de este tipo de microscopía, es que no es destructiva y posee la capacidad de extraer información de orientación y composición molecular, siendo por lo tanto una poderosa herramienta para realizar estudios *in-situ e in-vivo* en investigaciones biológicas y médicas (Bancelin, Aimé, Coradin, & Schanne-Klein, 2012). En contraste con la microscopía confocal, la cual se vale de un proceso de fluorescencia por excitación de un fotón y por ende utiliza fuentes de luz láser en el visible o UV, la MPM ofrece varias ventajas derivadas del uso de pulsos ultracortos en el infrarrojo como fuente de excitación y su confinamiento en un volumen focal pequeño. La luz infrarroja sufre menos esparcimiento en especímenes biológicos, existiendo menor distorsión en el enfoque y obteniendo mayor penetración (en tejido por ejemplo). Por otro lado, los efectos ópticos no-lineales dependen del cuadrado de la intensidad ocurriendo primordialmente en el volumen de enfoque, donde es posible concentrar cientos de $\text{TW}/\mu\text{m}^2$. De allí que sea posible obtener una resolución lateral y axial similar a la microscopía confocal (de al menos 300 nm y 400 nm, respectivamente) sin la necesidad de un filtro espacial en el detector. Además, el daño por calentamiento sufrido en la muestra, por absorción de la luz, es mínimo dado a la naturaleza pulsada de la luz, que posee baja potencia promedio.

Por su gran analogía con la microscopía confocal, el mecanismo físico más utilizado para implementar MPM ha sido tradicionalmente la fluorescencia por excitación de dos fotones (TPEF, por sus siglas en inglés) (Helmchen & Denk, 2005). No obstante, la TPEF es un proceso que involucra la absorción de la luz excitante (calentamiento local) y además es insensible a la orientación molecular; ya que no depende del estado de polarización de la luz incidente. En contraste, la generación de segundo armónico (SHG, por sus siglas en inglés) y técnicas de esparcimiento Raman estimulado como la del esparcimiento Raman de ondas anti-Stokes coherentes (CARS, por sus siglas en inglés), son procesos ópticos no-lineales no absorbentes y sensibles a la polarización de la luz excitante; (Freund, Deutsch, & Sprecher, 1986), (Gusachenko, Latour, & Schanne-Klein, 2010) esto es, no existe calentamiento en la zona irradiada y además ambas ofrecen información de orientación molecular (Zimmerley, y otros, 2010), (Rocha-Mendoza, y otros, 2007). Por tal motivo estos dos procesos son cada vez más utilizados en años recientes para implementar MPM. Pero más aún, el efecto CARS ha atraído particularmente la atención de científicos de ciencias de la vida por su ventaja adicional de obtener contraste químico. Esto ha hecho posible realizar estudios *in vivo* y no invasivos (sin marcadores fluorescentes) del funcionamiento intracelular mediante el monitoreo de grupos funcionales específicos que conforman sus organelos. (Raub, y otros, 2007).

En este proyecto de tesis maestría, como un paso previo a la implementación de la microscopía CARS, se propone implementar una técnica de enfoque espectral necesaria en microscopía CARS para obtener una mayor resolución espectral. El enfoque espectral consiste en concentrar, mediante un traslape espacio-temporal, la energía de dos espectros de dos fuentes de luz modulados de manera que la diferencia entre sus frecuencias ópticas sea constante en el tiempo de traslape. En esta tesis se implementa la técnica de enfoque espectral con una sola fuente láser de femto-segundos, donde su amplio espectro es dividido y modulado linealmente para aplicar esta misma técnica de enfoque espectral, otra diferencia importante de resaltar es que el enfoque espectral se estudia en la suma de frecuencias en vez de en la diferencia de frecuencias como se ha hecho en trabajos anteriores.

1.1 Sobre la espectroscopía CARS

Dado que la motivación principal para desarrollar este trabajo de tesis es dejar un arreglo experimental listo para utilizar finalmente la técnica de micro-espectroscopía no lineal Raman, vale la pena dedicar un par de páginas para introducir este proceso. El esparcimiento Raman Anti-Stokes Coherente es una técnica de esparcimiento Raman estimulado que fue demostrada por primera vez por P. D. Maker y R. W. Terhune en la compañía FORD en 1965 (Maker & Terhune, 1965), estudiando los efectos no lineales de tercer orden en diversos materiales. Curiosamente, aun trabajando para la FORD ellos no le dieron el nombre de CARS a este proceso, más bien lo llamaron simplemente “experimentos de mezcla de tres ondas”; el acrónimo CARS fue asignado casi diez años más tarde por R. F. Begley (Begley, Harvey, & Byer, 1974) y desde entonces ha sido objeto de diversos estudios y aplicaciones, siendo la más reciente en microscopía. En sus inicios el efecto CARS se utilizó para indagar la composición química en emulsiones y para visualizar la evaporación de agua en sistemas de gel de sílice (Lotem, Jr, T., & Bloembergen, 1976). Tales aplicaciones en química y biología demostraron las ventajas únicas de la técnica CARS sobre otros tipos de microscopía Raman: alta sensibilidad, alta velocidad y bajo daño ocasionado por luz. El primer reporte de microscopía CARS fue en 1982 por Duncan et al. (Duncan, Reintjes, & Manuccia, 1982) usando dos láseres de picosegundos con una geometría no colineal. Ellos adquirieron imágenes de células de piel de cebolla y de liposomas. Posteriormente, luego de un hueco de actividades científicas del tema, y gracias al advenimiento de los láseres de pulsos de femto-segundos, la microscopía CARS resurge en 1999, (Zumbusch, Holtom, & Xie, 1999) como una herramienta de gran utilidad en investigaciones biológicas y médicas. Esto por su capacidad de extraer información en tiempo real de estructuras moleculares y contraste supramolecular de una manera no destructiva y no invasiva; sin necesidad de fijar, teñir o marcar las muestras con proteínas fluorescentes.

Como bien se comentó arriba, CARS es un proceso no lineal de tercer orden y puede inducirse mediante una mezcla de cuatro ondas para ser más precisos. En la

mezcla, un haz de bombeo a frecuencia ω_p y un haz Stokes a frecuencia ω_s (primeras dos ondas) interactúan en una muestra con dicha no linealidad. Cuando la frecuencia de batimiento $\Delta\omega = \omega_p - \omega_s$, entre el haz de bombeo y el haz Stokes, coincide con alguna de las frecuencias vibracionales, Ω_n , los n-osciladores Ω_n se manejan coherentemente en resonancia con el batimiento. Mediante la interacción posterior (prácticamente instantánea) del mismo haz ω_p (tercer onda) con dichos n-osciladores resonantes se produce un efecto de esparcimiento Raman generando una señal anti-Stokes (cuarta onda) a frecuencia $\omega_{AS} = 2\omega_p - \omega_s$. En la figura 1 (Cheng & Xie, 2004) se muestra un diagrama de energía de CARS donde; (a) resonancia CARS caracterizada, (b) CARS no resonante de las contribuciones electrónicas definidas, (c) contribución electrónica por dos fotones del haz de bombeo asociado con un estado electrónico.

Es bien sabido que los procesos no lineales se optimizan al utilizar pulsos cortos de alta potencia pico y baja potencia promedio. En particular los pulsos de femto-segundos son usados en microscopía multi-fotón fluorescente y de segundo armónico, pero para microscopía CARS el espectro contenido en los pulsos de femto-segundos (cientos de cm^{-1}) es mucho más ancho que las bandas Raman ($\sim 10\text{ }cm^{-1}$). Esto produce que muchas componentes del espectro contribuyan a la señal no resonante de fondo (ruido) y no a la señal vibracional que se interesa medir. Cheng *et al.* demostró que una mayor relación señal-ruido se obtiene con pulsos de 2-3 ps ($\sim 10\text{ }cm^{-1}$). De aquí surge por tanto una pregunta: ¿cómo obtener resolución espectral utilizando fuentes de femto-segundos? Su uso no sólo permite una detección CARS con detectores rápidos y más eficientes de un solo canal (no multiplexada) similares a los utilizados en microscopía confocal por excitación de dos fotones (TPEF, por sus siglas en inglés) y/o microscopía de segundo armónico (SHG), si no que permite el uso de estas mismas técnicas no lineales (CARS, TPEF y SHG) utilizando la misma fuente.

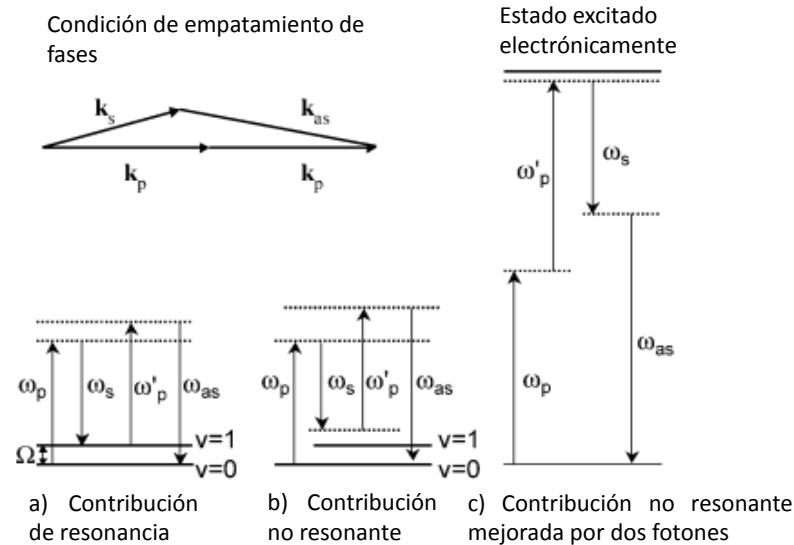


Figura 1. . Diagrama de energía de CARS . (a) Contribución resonante, (b) contribución no resonante, (c) contribución no resonante de dos fotones.

Para responder esta pregunta se debe tomar en cuenta que en el proceso CARS con pulsos de femto-segundos, la excitación vibracional está dada por la interferencia de los campos involucrados; esto es por el producto $E_p E_S^*$, donde E_p y E_S son los campos eléctricos asociados a los pulsos de bombeo y Stokes, respectivamente. En otras palabras, la resolución espectral no está determinada por el espectro individual de los pulsos de bombeo y Stokes, si no por el espectro de su interferencia temporal. En consecuencia, es posible usar pulsos de femto-segundos e incluso conseguir alta resolución espectral mediante una técnica conocida como enfoque espectral (Onorato, Muraki, Knutsen, & Saykally, 2007).

1.2 Antecedentes a esta tesis

En este contexto, sobre cómo utilizar pulsos de femto-segundos para microscopía CARS, Hellerer *et al* (Hellerer, Enejder, & Zumbusch, 2004) demostró una manera de lograr alta resolución espectral en CARS utilizando pulsos ultracortos en este régimen temporal, por medio de una técnica llamada “enfoque espectral”. La técnica consiste en aplicar “chirp” (modulación de fase temporal) a ambos pulsos, de bombeo y de Stokes, haciéndolos interferir posteriormente creando una diferencia de frecuencia instantánea (DFI) constante. El ancho espectral resultante de $E_p E_S^*$,

centrado en la DFI, está dado por su transformada de Fourier que está limitada por el ancho temporal de los pulsos individuales, mismos que pueden elongarse temporalmente al aplicar chirp lineal llegando hasta varios picosegundos. Hellerer *et. al.*, produjeron el “chirp” utilizando dispersión por velocidad de grupo con un sistema de modulación espacial óptico, el cual es típicamente complicado de implementar experimentalmente, ya que involucra una alineación casi perfecta de rejillas de difracción y lentes. Tal arreglo complicado se traduce finalmente en una manera ineficiente de controlar la modulación de fase existiendo gran pérdida de energía, en gran parte debido a las rejillas de difracción y la alineación misma.

Recientemente, en 2008, Rocha-Mendoza, *et. al.* (Rocha-Mendoza, Langbein, & Borri, 2008) implementó una manera más eficiente de producir el enfoque espectral utilizando vidrios de alto GVD, simplificando significativamente el sistema a comparación del sistema de modulación espacial de luz o de lentes-rejilla. Investigó la resolución espacial como función de la duración de los pulsos ensanchados y caracterizó la influencia del traslape temporal de los pulsos en la intensidad de la señal. En esta tesis se utilizará esta técnica como un paso preliminar para desarrollar microscopía CARS por primera vez en México, para ello se estudiará el enfoque espectral como función de la longitud de vidrio, utilizado para ensanchar temporalmente los pulsos (chirp), y será visualizado a través del ancho espectral en la suma de frecuencia óptica de los haces de bombeo y Stokes. Mismos que serán obtenidos de la misma fuente láser, otro aspecto importante de la técnica de Rocha-Mendoza, *et. al.* (2008) sobre la de Hellerer, *et. al.* (2004).

1.3 Objetivos

El objetivo general del proyecto es implementar y caracterizar la técnica de enfoque espectral, para lograrlo el plan de trabajo se divide en las siguientes metas particulares:

- Caracterizar del ancho temporal y espectral de un láser de 100 femto-segundos.

- Dividir del ancho espectral del láser para la obtención de haces fuentes por medios ópticos y caracterización de su ancho temporal.
- Medir el enfoque espectral mediante la técnica de suma de frecuencias.

1.4 Estructura de la tesis

La tesis comprende de seis capítulos en total. En el primer capítulo, se presenta una breve y concisa introducción al tema donde también se describe la motivación del trabajo, se cubren los antecedentes en el área de estudio de la técnica de enfoque espectral, se ponen en contexto los objetivos generales y particulares del proyecto y se describe la estructura de la tesis con un vistazo general del contenido de cada capítulo.

Los conceptos básicos necesarios para tener un conocimiento general para abordar el tema principal de esta tesis se explican en el capítulo 2. Se describe qué son, cómo se generan los pulsos ultracortos y cómo se miden a partir del principio de auto-correlación. Se explica qué es la dispersión de velocidad de grupo, concepto clave para entender el tema del ensanchamiento temporal que sufren los pulsos ultracortos, se explica teóricamente cómo y por qué se genera este fenómeno. El capítulo 2 concluye con la explicación de los procesos no lineales de segundo orden, en particular la generación de suma de frecuencias y generación de segundo armónico. Procesos ópticos no lineales utilizados en los experimentos de esta tesis.

El capítulo 3 está dedicado a explicar el fenómeno de enfoque espectral, tema central de la tesis. Se explica qué es el enfoque espectral haciendo una analogía con el enfoque de un haz de luz, se describe cómo afecta a diferentes procesos no lineales y finalmente se describen los modelos utilizados para explicar el enfoque espectral cuando interactúan dos pulsos ultra cortos. Con dichos modelos se obtienen expresiones analíticas mismas que son modeladas bajo condiciones experimentales y realizar un análisis posterior en el capítulo 5.

En el capítulo 4 se describen los distintos materiales y métodos utilizados en los experimentos realizados en este proyecto. Asimismo se describe brevemente el

arreglo experimental para caracterizar en ancho temporal de la fuente láser, el auto-correlador. Se prosigue explicando la metodología a seguir para la caracterización del material dispersivo (ventanas de vidrio de alta dispersión de velocidad de grupo). Finalmente, se describe el arreglo experimental empleado para observar suma de frecuencias y con ellos caracterizar el enfoque espectral.

En el capítulo 5, se presentan los resultados experimentales, tanto de la caracterización de las ventanas de vidrio y de los pulsos ultra cortos de la fuente láser, como de la suma de frecuencias que se observa cuando ambos pulsos se traslapan en el material no lineal (cristal BBO). Se obtienen los espectros de la suma de frecuencias ópticas como función del ancho del vidrio para analizar el comportamiento de su ancho espectral. Asimismo se estudia el efecto producido por el enfoque de objetivos de microscopio, de diferentes aperturas numéricas (N.A.), en el enfoque espectral y se analizan los resultados con las simulaciones numéricas basadas en expresiones analíticas obtenidas en el capítulo 3.

Finalmente, en el capítulo 6 se presentan las principales conclusiones y trabajo a futuro.

Capítulo 2. Fundamentos Teóricos

Este capítulo es escrito con dos objetivos: en primer lugar describir los conceptos básicos necesarios para tener un fundamento teórico general de esta tesis y, en segundo lugar como introducción a los procesos involucrados en la técnica de enfoque espectral descrito en el siguiente capítulo de la tesis, el capítulo 3. Se inicia explicando el fenómeno de dispersión y dispersión de velocidad de grupo (DVG). Después, se habla sobre el tema de los pulsos ultracortos, abordándose éste de manera sencilla con el espíritu de que aquellos que no están inmersos en el tema puedan comprender qué son y cómo se generan los pulsos ultracortos. Posteriormente, en el capítulo se explica el tema del ensanchamiento temporal que sufren los pulsos al propagarse por un medio material, generalmente transparente a las longitudes de onda del espectro de los pulsos, cuya DVG es grande. Es importante enfatizar que tal fenómeno de ensanchamiento temporal es de hecho el concepto fundamental (clave y necesario) para comprender este trabajo de tesis. Para finalizar el capítulo, se describen los procesos ópticos no lineales de segundo orden de generación de suma de frecuencias (GSF) entre dos pulsos de luz, y se particulariza al caso de de generación de segundo armónico (GSA); ambos procesos se observan en los experimentos de esta tesis.

2.1 Dispersión y dispersión de velocidad de grupo de un material

El fenómeno de dispersión óptica es la separación de las ondas de distinta frecuencia (o longitud de onda) que compone un haz de luz, al atravesar un material. Tal separación se debe a que la velocidad de cada onda, o velocidad de fase de las ondas, es diferente para cada frecuencia óptica. Todos los medios materiales son más o menos dispersivos, y la dispersión afecta a todas las ondas. Por ejemplo, es bien conocido que la luz blanca está compuesta por todas las frecuencias del espectro visible (longitudes de onda desde 400 a 650 nm, aproximadamente). Pues bien, cuando la luz blanca pasa a través de un bloque de vidrio, los diferentes colores son refractados (desviados) si los lados del bloque no son paralelos, como en un prisma por ejemplo; esto es, los diferentes colores de la luz se propagan a

través del prisma con ángulos distintos volviéndose a refractar en la superficie de salida produciendo como resultado un espectro. Este efecto es lo que produce ni más ni menos el famoso arcoíris, el cual ocurre cuando la luz del sol pasa a través de las gotas de agua en la atmósfera. Si se observa bien notará que la luz azul (de menor longitud onda/mayor energía) se desvía más que la luz roja, estando la primera siempre en la parte inferior del arcoíris. En contraste, cuando la luz blanca pasa a través de un bloque de vidrio paralelo, las longitudes de onda se separan unas de otras por la diferente velocidad de fase en el medio, en donde viajan más rápido las longitudes de onda mayores (de menor frecuencia o energía); esto es las ondas de color rojo viajan más rápido que las de color azul.

Como se verá más adelante un pulso ultracorto está compuesto por un paquete de ondas de diferente frecuencia, por lo que no se escapan del fenómeno de dispersión. En su caso el pulso viaja en su conjunto a una velocidad; es decir, cada frecuencia óptica viaja a diferente velocidad, pero el pulso en su conjunto se mueve una velocidad conocida como la velocidad de grupo. El efecto de dispersión se puede acentuar cuando el medio material tiene una dispersión de velocidad de grupo grande; esto es, cuando el cambio en la velocidad de grupo es función también de las frecuencias. Para los pulsos ultracortos este efecto puede ser nocivo puesto que la dispersión separa las componentes de su espectro y como consecuencia el pulso sufre un ensanchamiento temporal, tal y como se explicará más adelante, aunque para otros fines, como el que se persigue con esta tesis, este proceso de separación temporal en las frecuencias es de hecho benéfico siempre y cuando se tenga un buen control sobre él.

Matemáticamente, la velocidad de fase, la velocidad de grupo y la dispersión de velocidad de grupo se pueden deducir desarrollando en una serie de Taylor la constante de propagación, $k(\omega)$, alrededor de la frecuencia central del paquete de ondas (pulsos ultracortos en nuestro caso) de la forma

$$k(\omega) = k_0 + k' \times (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}k'' \times (\omega - \omega_0)^2 + \dots, \quad (1)$$

donde ω_0 es la frecuencia central dada en radianes por segundo y los términos k_0 , k' , k'' están dados por las expresiones

$$k_0 \equiv k(\omega)|_{\omega=\omega_0} = \frac{\omega_0}{v_\phi(\omega_0)}, \quad (2)$$

$$k' \equiv \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega=\omega_0} = \frac{1}{v_g(\omega_0)}, \quad (3)$$

$$k'' \equiv \left. \frac{d^2k}{d\omega^2} \right|_{\omega=\omega_0} = \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{v_g(\omega_0)} \right). \quad (4)$$

La expresión (2) relaciona la constante de propagación con la velocidad de fase $v_\phi(\omega)$ que corresponde a la velocidad con la que se mueven las oscilaciones de cada frecuencia ω dentro del pulso. La expresión (3) es el cambio de la constante de propagación con respecto a la frecuencia y es inversamente proporcional a la velocidad de grupo, $v_g(\omega)$, que a diferencia de la velocidad de fase, define la velocidad a la que viaja la envolvente del pulso. Finalmente, la expresión (4), describe la dispersión de velocidad de grupo, la cual nos dice que la velocidad de grupo no es la misma para todas las frecuencias contenidas en el pulso, lo que causa que la forma su envolvente cambie cuando interactúa con materiales dispersivos.

2.2 Pulsos láser ultra cortos

Como su nombre lo indica, los pulsos láser ultra cortos son pulsos de luz con duración temporal muy breve, del orden de pico segundos o femto segundos (10^{-12} y 10^{-15} segundos, respectivamente) (Paschotta, 2010). Matemáticamente, su forma está descrita de la forma

$$E(t) = E_o(t)e^{-i\omega_0 t} e^{-i\phi}, \quad (5)$$

donde $E_o(t)$ es la envolvente temporal del pulso, y los términos exponenciales contienen la ω_0 (la frecuencia óptica central) y ϕ el término de fase compleja. Es

bien sabido que el perfil temporal del campo eléctrico que se ajusta más al caso experimental es el de una envolvente secante hiperbólica (Weiner, 2009, pág. 87) dada por

$$E_o(t) = E_0 \operatorname{sech} \frac{t^2}{\tau}. \quad (6)$$

No obstante, en esta tesis, por simplicidad matemática en el modelo del enfoque espectral a explicar más adelante, se utiliza una envolvente temporal gaussiana. Entonces, el perfil temporal gaussiano está dado por

$$E_o(t) = E_0 e^{-t^2/\tau_{G0}^2}, \quad (7)$$

con $\tau_{G0} = \tau_0/\sqrt{2\ln 2}$, donde τ_0 es el ancho temporal de la gaussiana cuando el pulso está limitado en transformada de Fourier y es definido a la mitad del ancho de la intensidad dado por $I = E_o(t) \times E_o(t)^*$; es decir, el ancho está definido tomando el criterio FWHM (por sus siglas en inglés). Cabe mencionar que el término, limitado en transformada de Fourier, viene del hecho que el espacio temporal y el espacio de frecuencias del campo eléctrico descrito en la expresión gaussiana (7) están ligados a través de la transformada de Fourier por el producto de sus respectivos anchos temporales, τ , y espectrales, $\Delta\omega$, de la forma (Weiner, 2009, pág. 87)

$$\Delta\omega \cdot \tau \geq 2\pi \cdot 0.44. \quad (8)$$

Debido a que el ancho temporal τ es variable, dependiendo de la dispersión del medio en el que se propaga el pulso, y el contenido espectral $\Delta\omega$ del pulso no cambia durante la propagación (siempre y cuando el haz no sea confinado ni enfocado en el medio de tal manera que provoque efectos Raman o no lineales), la expresión (8) implica que existe un valor mínimo para el ancho temporal. Cuando se cumple ese mínimo experimentalmente, mediante la compensación de la dispersión dentro de la cavidad láser, se tiene un haz limitado en transformada de Fourier.

2.2.1 Generación de pulsos ultra cortos

A diferencia de los láseres de emisión continua (láseres CW) los cuales radian luz monocromática de manera constante en el tiempo y poseen un ancho espectral bien definido típicamente angosto (entre 0.2 a 2 nm), un láser pulsado emite una serie de pulsos repetitivos los cuales contienen un amplio rango de longitudes de onda. Los pulsos son generados en el interior de la cavidad del láser donde, según el medio activo (Titanio:Zafiro típicamente), se excitan diferentes modos longitudinales de las frecuencias ópticas, que son “forzados” a oscilar en fase produciendo una interferencia constructiva con picos de alta intensidad que duran precisamente el tiempo que todos los modos están en fase. De aquí que entre más frecuencias sean generadas en la cavidad (espectro óptico más ancho) y que logren estar en fase, menor es la duración del pulso. El Titanio:Zafiro es ideal para estos fines ya que es capaz de generar, mediante un proceso de fluorescencia inducida, longitudes de onda que van desde 700 nm hasta 1100 nm en el infrarrojo cercano cuando se bombean con láseres de estado sólido de emisión continua que emiten en 532 nm. Además presenta otras características ópticas necesarias para el amarre de modos tales como el efecto Kerr y la absorción saturable, tales como se explica a continuación.

La figura 2 muestra esquemáticamente el proceso de generación de un tren de pulsos ultracortos. En la parte inferior del esquema se muestra un pulso aislado, donde se puede apreciar la envolvente gaussiana de la Ecuación 3 que modula al campo eléctrico descrito en la Ecuación 1. Asimismo, dentro de la envolvente gaussiana se aprecia cómo el campo eléctrico oscila con una frecuencia temporal variable debido al contenido espectral amplio de los pulsos.

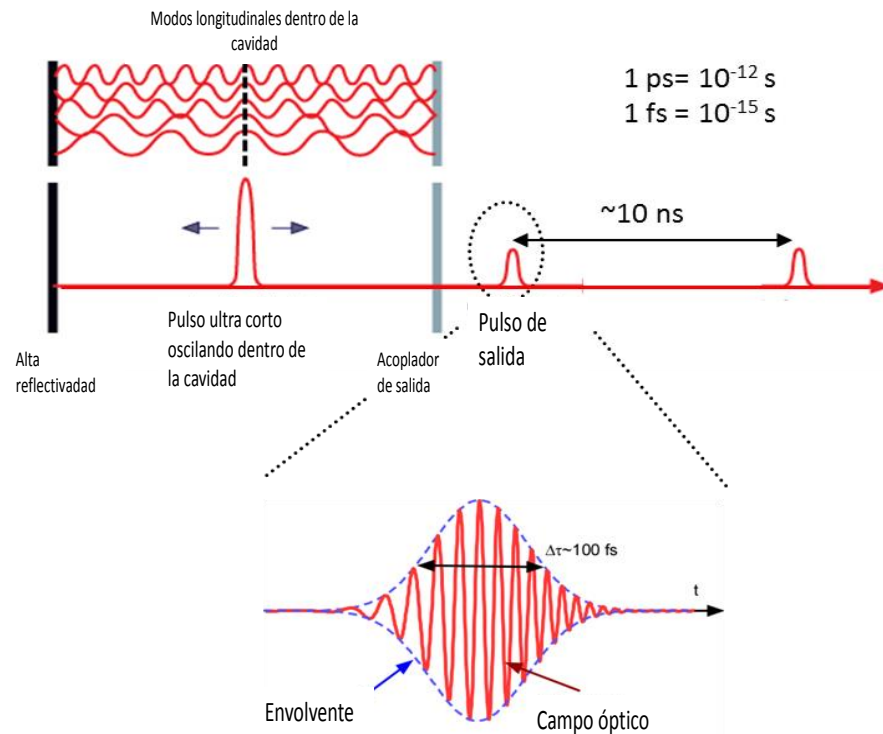


Figura 2. Esquema representando la generación de trenes de pulsos ultracortos. Se observan los modos longitudinales soportados en una cavidad. Una relación continua de fase entre modos se establece, dando pie a la formación de pulsos de alta intensidad debido a la interferencia constructiva entre los modos.

Para que la generación de pulsos ultracortos descrita en la figura 2 se lleve a cabo, se debe conseguir el amarre de modos (Mode-Locking, en inglés) dentro de la cavidad, el cual involucra dos procesos (Weiner, págs. 64-67). El primer proceso es la compensación de la dispersión de velocidad de grupo; esto para “forzar” que las diferentes frecuencias ópticas generadas en la cavidad láser oscilen en fase e interfieran dentro de la misma. Repitiéndose este proceso de interferencia cada vez que las ondas viajen una vuelta entera dentro de la cavidad a una frecuencia de repetición $f(= c/2L)$, donde c es la velocidad de la luz y L la longitud de la cavidad. El segundo proceso es la absorción saturable; esto con el fin de que la transmisión aumente en cada pico de intensidad y satisfacer con ello la condición de que las pérdidas por absorción sean menores a la ganancia del medio activo y con ello que la potencia de cada pulso incremente.

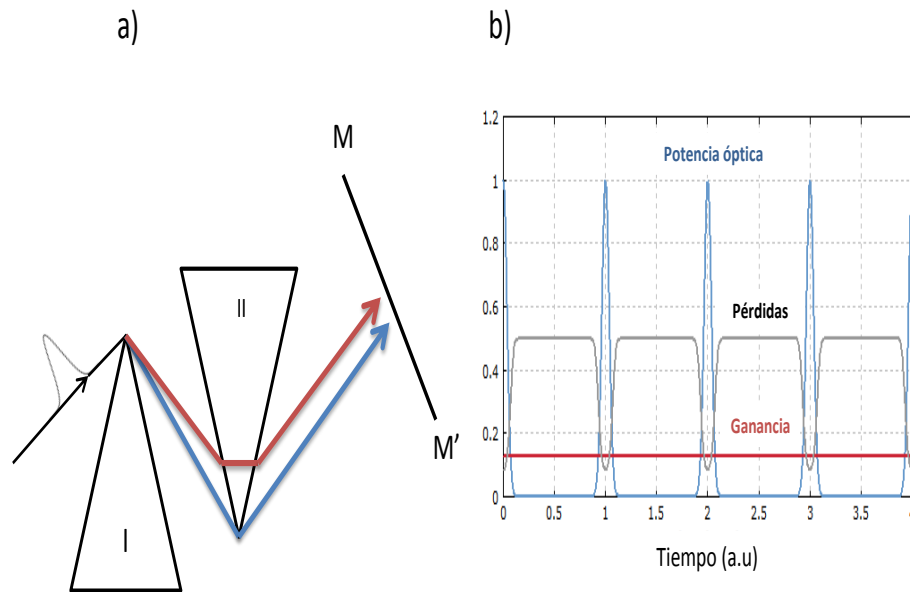


Figura 3. a) Configuración de dispersión negativa con dos prismas. b) Evolución temporal de la potencia óptica y de las pérdidas en un láser de mode-lock pasivo.

La figura 3 esquematiza cómo se dan ambos procesos en una cavidad láser, el proceso de absorción (a) es posible utilizando una combinación de prismas ópticos y espejos procurando propagar las frecuencias ópticas mayores (con menor velocidad de fase) más cerca de la arista del prisma y las frecuencias ópticas menores (con mayor velocidad de fase) más alejado de la arista para que se propague por más vidrio y con ello producir un camino óptico mayor (apoyarse con una figura). El segundo proceso (Figura 3b) la absorción saturable, es posible en los cristales de Titanio: Zafiro para intensidades altas mismo que se da en combinación con el efecto Kerr óptico. Una vez generado un pulso dentro de la cavidad, su alta intensidad satura la absorción del cristal por lo que la transmisión aumenta y las pérdidas disminuyen durante ese tiempo hasta que las pérdidas son menores que la ganancia, esto provoca que pulsos o ruidos de más baja intensidad que se generen en la cavidad sean absorbidos por el sistema de absorción saturable mientras que los pulsos de alta intensidad logran resonar en la cavidad. Al mismo tiempo, por efecto Kerr se crea un efecto de auto-enfocamiento al incidir un haz gaussiano en el medio, cuya parte central es más intensa y va decayendo hacia sus extremos, por lo que el índice de refracción también es mayor en el centro. Esto tiene dos efectos para la generación de pulsos, por un lado dado que la luz se enfoca y la saturación

de la absorción ocurre primordialmente en el centro produciendo, como se acaba de mencionar arriba, que las pérdidas sean menores; por otro lado, debido a que el índice de refracción es mayor en la parte central entonces la velocidad de las ondas es menor en la parte central pero mayor en los extremos. Esto produce también un efecto de compensación en la velocidad de grupo. Estas características propias del Titanio: Zafiro hacen que sea un material idóneo para la generación de pulsos estables.

2.2.2 Características de los pulsos ultracortos

Los pulsos ultra cortos tienen características que los hacen de interés para varias aplicaciones, algunas de éstas son:

- Una alta resolución temporal: Debido a la duración de pico segundos o femto segundos, los pulsos ultracortos dan una alta resolución temporal para excitación y medir procesos físicos, químicos y biológicos ultra rápidos.
- Una alta resolución espacial: La extensión espacial de un pulso corto de luz está dada por la duración del pulso multiplicado por la velocidad de la luz por lo que para pulsos de muy corta duración, la longitud espacial del pulso de luz está en el orden de micrómetros. Esto hace que los pulsos ultra cortos sean útiles para aplicaciones en microscopía y de formación de imágenes.
- Un ancho de banda amplio: Al reducir la duración temporal de un pulso óptico, su ancho de banda incrementa. Pulsos de 100 fs tienen un ancho de banda del orden de >200 nanómetros. Esto es de gran interés en el campo de las comunicaciones ópticas por el gran contenido de información que se puede transferir con técnicas de modulación y multiplexado heterodinos.
- Altas potencias pico: Para un pulso de energía, la potencia pico y la intensidad son inversamente proporcional a la duración del pulso. Láseres de femto segundos son usados para obtener intensidades pico ultra altas con solo niveles moderados de energía. Por ejemplo, 100 mW de potencia promedio, con pulsos de 100 fs de

duración y 100 MHz de frecuencia de repetición, puede generar potencias pico de hasta 10 kW, que enfocados en una área de $1\mu\text{m}^2$, resulta en intensidades pico de alrededor 1 TW/cm^2 , suficientes para producir efectos ópticos no lineales.

2.3 Ensanchamiento de pulsos ultracortos por modulación temporal del espectro (chirp)

Considérese un pulso Gaussiano el cual ha adquirido una fase de, $\phi = \beta t^2$, al propagarse dentro de un medio material con dispersión de velocidad de grupo. Para modelarlo matemáticamente, se reescribe la Ecuación 5 normalizando la amplitud E_0 (por mera simplicidad matemática) para obtener que el campo eléctrico del pulso toma la forma

$$E(t) = e^{-\frac{t^2}{\tau_0^2} - i\phi(t)} = e^{-\frac{t^2}{\tau_0^2} - i(\omega_0 t + \beta t^2)}, \quad (9)$$

con una duración de pulso inicial τ_0 , tomada al FWHM cuando $\beta = 0$; es decir, cuando el pulso es limitado en transformada de Fourier.

Volviendo al haz gaussiano con chirp, a consecuencia de la dispersión adquirida, la frecuencia instantánea del pulso, definida por $\omega_{inst}(t) = -\frac{d\phi(t)}{dt}$, toma la forma

$$\omega_{inst}(t) = \omega_0 + 2\beta t, \quad (10)$$

esto indica que el contenido de frecuencias del campo eléctrico del pulso incrementa linealmente en el tiempo. Como paréntesis nótese que el parámetro beta, β , o simplemente el parámetro del chirp, no es más que la mitad de la pendiente de la ecuación lineal (10). Dicho proceso de aumento lineal en la frecuencia se conoce como chirp lineal, o modulación lineal de frecuencias. Como consecuencia de esta modulación, tal y como se explicó anteriormente, la duración del pulso crece conforme el haz se propaga dentro del material debido a su dispersión. La figura 4 esquematiza el ensanchamiento temporal de un pulso que se propaga a través de un

vidrio de alta DVG de longitud L , se puede apreciar que el pulso inicialmente corto, de duración τ_0 , se hace más ancho $\tau(z = L)$ y también cómo el contenido de frecuencias no cambia, simplemente se modula la frecuencia instantánea linealmente a lo largo del tiempo.

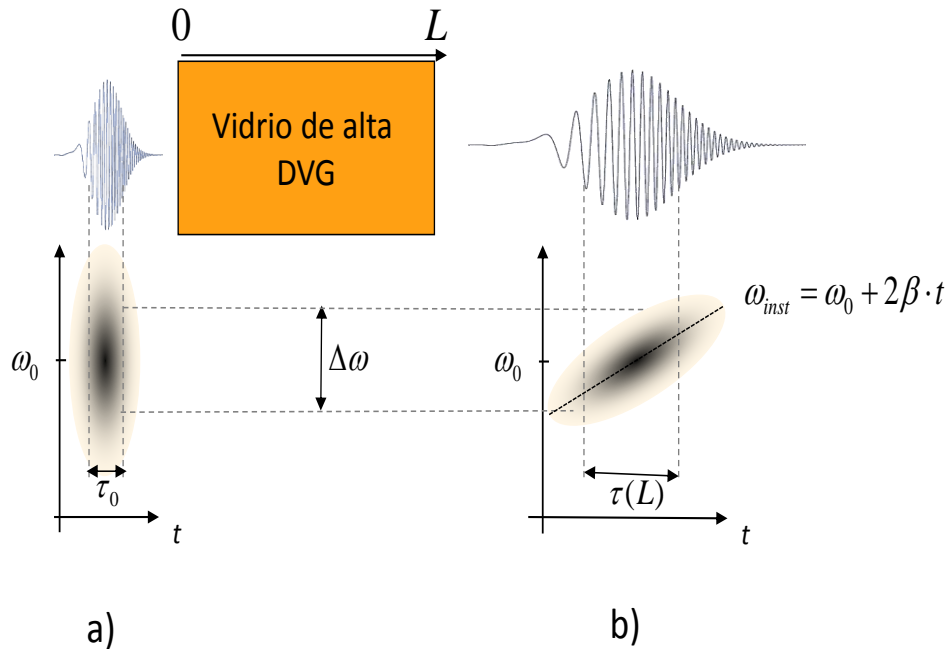


Figura 4. Esquema de ensanchamiento temporal por vidrio de alta DVG. a), pulso ultra corto con su contenido de frecuencias modulado en un tiempo τ_0 . b), pulso ensanchado temporalmente con su frecuencia instantánea modulada en tiempo τ_L .

Cuando el pulso se propaga una distancia z dentro de un material dispersivo, el ancho del pulso puede calcularse con la expresión del ensanchamiento temporal dada por

$$\tau(z) = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln 2 |k''| z}{\tau_0^2} \right)^2}, \quad (11)$$

igualmente, el parámetro beta (o simplemente el parámetro del chirp), se puede calcular con la expresión del parámetro chirp dada por

$$\beta(z) = 8(\ln 2)^2 |k''| z \tau_0^{-2} \tau^{-2}. \quad (12)$$

Ambas ecuaciones (11 y 12) son función del ancho inicial del pulso τ_0 , la distancia z y la dispersión de velocidad de grupo (DVG) del material k'' , dada en la ecuación (4), la cual se puede reescribir en términos de la longitud de onda, $\lambda = 2\pi n(\lambda)c/\omega$, para obtener

$$k'' = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2 n}{d\lambda^2}, \quad (13)$$

donde c es la velocidad de la luz y n es el índice de refracción del material dependiente de la longitud de onda. La expresión (13) se puede estimar numéricamente conociendo el material y calculando el índice de refracción en función de las longitudes de onda con la expresión de Sellmeier,

$$n^2(\lambda) = 1 + \frac{B_1 \lambda^2}{\lambda^2 - C_1} + \frac{B_2 \lambda^2}{\lambda^2 - C_2} + \frac{B_3 \lambda^2}{\lambda^2 - C_3}, \quad (14)$$

donde B_j , y C_j , con $j = 1, 2, 3$, son parámetros que dependen del material y pueden ser fácilmente obtenidos de catálogos de empresas fabricantes de vidrio.

Una vez calculada la dispersión de velocidad de grupo, es posible estimar el ensanchamiento temporal y, a su vez, estimar el parámetro de chirp, para finalmente conocer la modulación temporal inducida mediante la ecuación de la frecuencia instantánea (10).

2.3.1 Igualación del chirp en pulsos ultracortos diferentes

Estudiando las ecuaciones (11) y (12) para el caso de dos pulsos ultracortos es posible vislumbrar cómo se puede controlar el ensanchamiento temporal de una manera relativamente fácil. En la figura 5 se muestra un cálculo, utilizando estas ecuaciones aplicado a dos pulsos, Stokes y bombeo, con longitudes de onda de 830 nm y 750nm, respectivamente; ambos tienen un ancho temporal inicial de 100 fs de duración. El pulso de Stokes se representa con línea roja mientras que el de bombeo con línea negra. En la gráfica, la ordenada representa el desplazamiento z (en centímetros) dentro del material, mientras que la abscisa muestra dos escalas: la escala de la izquierda representa el valor del parámetro $\beta(z)$ mientras que la escala vertical derecha indica el valor de ancho temporal adquirido $\tau(z)$. Obsérvese en la figura 5 cómo al incrementar la longitud del vidrio el parámetro chirp primero crece rápidamente hasta llegar a un valor máximo para luego decaer asintóticamente hasta un valor constante dependiendo de la longitud de onda. En contraparte el ancho temporal crece primero lentamente para luego crecer en forma lineal.

Asimismo, en la misma figura 5, se puede observar que es posible obtener el mismo parámetro β (es decir, el mismo chirp) y el mismo ancho temporal τ , para dos pulsos de diferente frecuencia. Para esto la distancia recorrida, $z = L_S$, por el pulso de Stokes (menor energía) debe ser mayor que la distancia recorrida, $z = L_P$, por el haz de bombeo. Por ejemplo, con la ayuda de las líneas segmentadas (horizontales y verticales) de la figura 4 se puede observar que, para que ambos pulsos tengan parámetros iguales $\beta_P = \beta_S = 10 \text{ ps}^{-2}$, las longitudes de los vidrios deben ser de 12.25 cm y 14.29 cm, respectivamente. Como efecto ambos pulsos también tienen un ancho temporal $\tau_P = \tau_S \approx 1.1 \text{ ps}$. Por lo tanto, para lograr experimentalmente que los parámetros de chirp de dos pulsos de diferente frecuencia óptica sean iguales la razón de la longitud del vidrio recorrido debe ser $14.29 \text{ cm}/12.25 \text{ cm} = 1.166$. Esto fue demostrado por Rocha-Mendoza et. al (2008)., quienes encontraron que este valor es igual a:

$$k''(\lambda_P)/k''(\lambda_S)d = L_S/L_P. \quad (15)$$

Con la ayuda de las expresiones (13) y (14), substituidas en esta última expresión (15), es posible calcular las longitudes de vidrio necesarias para que los parámetros del chirp sean iguales, sin necesidad de caracterizar los anchos temporales experimentalmente. Lo anterior es posible siempre y cuando se conozcan los coeficientes de Sellmeier de la ecuación (14) para evaluar k'' en las longitudes de onda de interés (Rocha-Mendoza, Langbein, & Borri, 2008). Cabe mencionar que en este trabajo de tesis, al no conocer el vidrio, se realizó el proceso inverso, existió la necesidad de caracterizar primero el tipo de vidrio utilizado haciendo uso de las mismas ecuaciones.

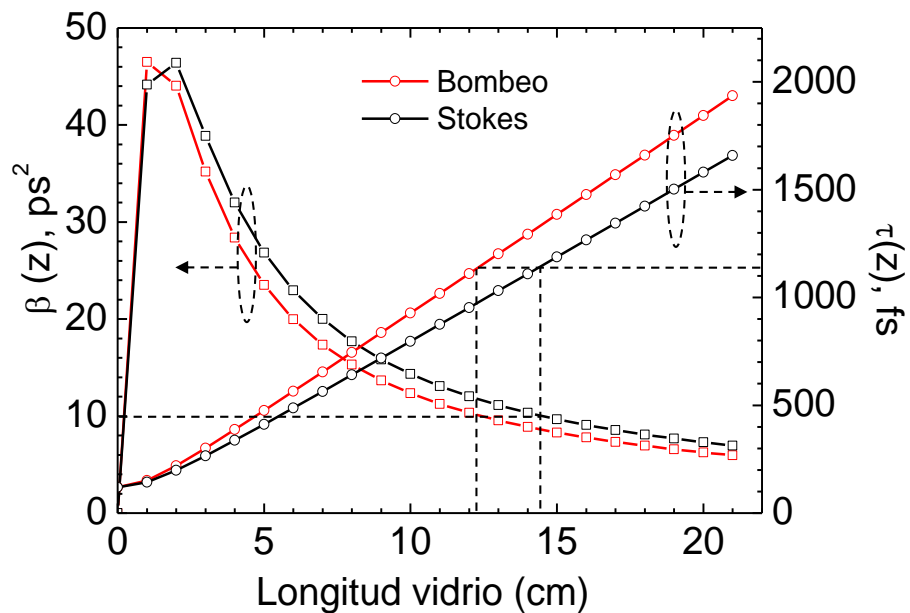


Figura 5 Simulación de los parámetros $\beta(z)$ y $\tau(z)$ según las ecuaciones (11) y (12) según el texto.

2.4 Óptica no lineal de segundo orden

Cuando un haz de luz se propaga a través de un medio, los electrones libres y/o enlaces dipolares de los arreglos de átomos (o moléculas) que lo constituyen, son movidos al interactuar con el campo eléctrico de la luz. Este movimiento de electrones dentro del medio funciona como una fuente de radiación que reemite luz a la misma frecuencia, ω , del campo luminoso incidente. Para grandes intensidades de la luz, tales electrones libres (o enlaces dipolares) no oscilan fielmente a la frecuencia del campo eléctrico incidente debido a que el potencial al que están inmersos (o estiramiento de sus enlaces) ya no es proporcional al campo de la luz incidente. Esto hace que su oscilación se distorsione generando componentes espectrales proporcionales a la frecuencia del campo; esto es, generan armónicos de ω como por ejemplo $2\omega, 3\omega$, etc.

Para describir la no linealidad óptica físicamente, veamos cómo el momento dipolar por unidad de volumen, o la polarización $\tilde{P}(t)$, de un material depende de la fuerza del campo $\tilde{E}(t)$ aplicado. Asumiendo un medio no dispersivo y sin pérdidas, la polarización puede expresarse como una serie de potencias de Taylor de la forma

$$\tilde{P}(t) = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} \cdot E_0 e^{-i\omega t} + \chi^{(2)} : E_0^{(2)} e^{-i2\omega t} + \dots + \chi^{(j)} E_0^{(j)} e^{-ij\omega t} \right) \quad (16)$$

donde ϵ_0 es la permitividad dieléctrica del vacío. El primer término contiene la susceptibilidad lineal $\chi^{(1)}$, la cual origina fenómenos ópticos de 1^{er} orden (o lineales), tales como la absorción, la reflexión y la dispersión. Los términos subsecuentes $\chi^{(j)}$ corresponden a tensores de susceptibilidades de orden $j + 1$ y definen el orden del fenómeno no lineal y son mucho menor que la susceptibilidad de 1^{er} orden. Por ejemplo, una $\chi^{(2)}$ origina procesos no lineales de 2^{do} orden, tales como la generación de segundo armónico y la suma de frecuencias, pero $\chi^{(2)} \approx 10^{-12} \chi^{(1)}$.

2.4.1 Generación de Suma de Frecuencias

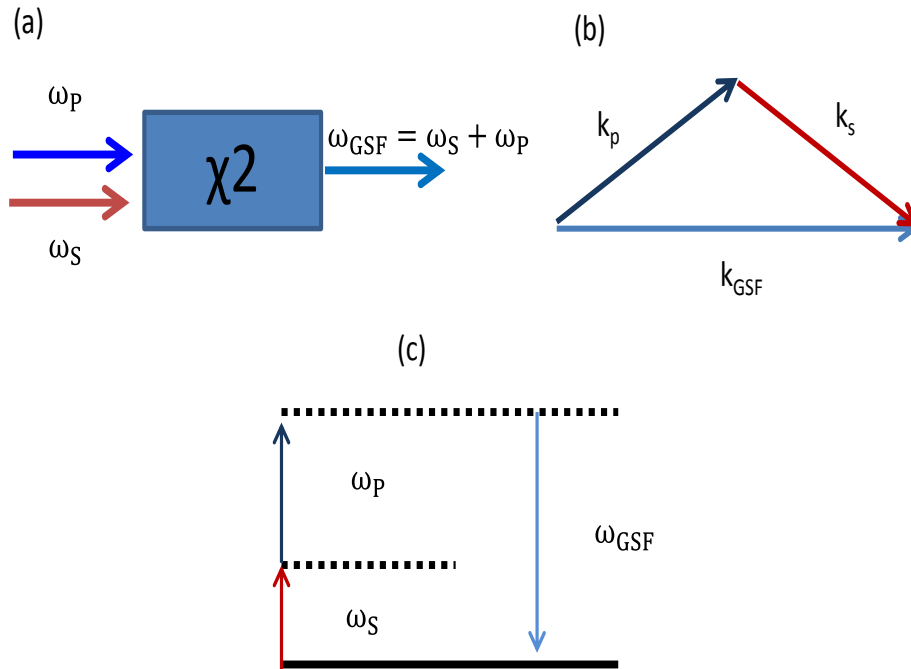


Figura 6. Generación de Suma de Frecuencias. (a) Ilustración geométrica; (b) conservación de momento, (c) conservación de energía.

Basándose en las ecuaciones de Maxwell y asumiendo un medio no lineal, no magnético y sin cargas libres, la ecuación de la propagación de las ondas electromagnéticas se define de la siguiente manera (Boyd, 2008)

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{\epsilon^1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = \frac{1}{c^2 \epsilon_0} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}, \quad (17)$$

esta expresión describe la propagación de un campo eléctrico en espacio libre. El término adicional (término no homogéneo) es la segunda derivada con respecto al tiempo de la polarización y puede interpretarse como una fuente de campo eléctrico. Como consecuencia de la 2da derivada de esta ecuación y la no linealidad de la expresión (17), el principio de superposición ya no es aplicable y el acoplamiento de los campos eléctricos debe ser considerado; para el caso que aquí se estudia se tienen dos campos eléctricos, un campo de bombeo (ω_p) y otro llamado Stokes (ω_s).

La interacción no lineal entre ellos tendrá como consecuencia, entre otros efectos, la generación de una suma de frecuencias ópticas (GSF) descrita en la figura 6.

Desde un punto de vista cuántico, en el proceso de GSF se aniquilan dos fotones con frecuencia ω_s y ω_p generándose simultáneamente un tercer fotón con frecuencia ω_{gsf} (Figura 6 a-c) cuya energía es igual a la suma de los fotones incidentes. En otras palabras, existe conservación de energía la cual se expresa por

$$\omega_{gsf} = \omega_p + \omega_s, \quad (18)$$

además, para que se exista un proceso de GSF más eficiente debe existir también conservación de momento (ver Fig. 5b); esto es

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_p + \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_o = 0. \quad (19)$$

Cumplir la condición de conservación de momento en un proceso no lineal se le conoce como empatamiento de fase perfecto. Volviendo a la ecuación (16), para resolverla considérese que el campo de bombeo tiene una amplitud A_p y el de Stokes una amplitud A_s (ambas amplitudes son función de z), resultando en un sistema de ecuaciones acopladas. La polarización no lineal de segundo orden P_2 se describe entonces de la siguiente manera

$$P_2 = 2\epsilon\chi^{(2)}A_pA_s e^{i(k_p+k_s)z-i(\omega_p+\omega_s)t}. \quad (20)$$

Insertando la ecuación (19) en (17) y aplicando la aproximación de que la amplitud varía lentamente $\left| \frac{d^2 A_2}{dz^2} \right| \ll \left| k_o \frac{dA_2}{dz} \right|$ se obtiene que

$$\frac{dA_2}{dz} = -\frac{i\chi^{(2)}\omega_0^2}{k_o c^2} A_p A_s e^{i\Delta k z} = \kappa A_p A_s e^{i\Delta k z}, \quad (21)$$

donde se observa que si bien la amplitud del campo del proceso A_2 es no lineal depende linealmente ya sea de A_p y A_s , si una de ellas varía mientras la otra permanece constante. Cuando se tiene el caso degenerado en el que las ondas

interactuantes son iguales, $A_p = A_s$, es más fácil discernir la no linealidad de A_2 , como se explica más adelante.

Si se asume que solo una pequeña porción de la radiación de bombeo se convierte ω_{gsf} , despreciando la variación de A_p y A_s , a lo largo de z , es posible obtener la amplitud de campo que sale del cristal con longitud L , $A_2(z = L)$, para finalmente obtener intensidad de la suma de frecuencia dada por

$$I_{sfg} = |A_2(L)|^2 = \kappa |A_p|^2 |A_s|^2 L^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right), \quad (22)$$

donde la función *sinc* define la función de empatamiento de fase del proceso. Nótese que la intensidad I_{sfg} crece en un régimen lineal con ambas intensidades del haz de Stokes y de bombeo.

2.4.2 Generación de Segundo Armónico

La generación de segundo armónico es un caso particular de suma de frecuencias donde tanto el haz de bombeo como el haz de Stokes tienen la misma frecuencia y amplitud de entrada $\omega_p = \omega_s$ y $A_p = A_s$, respectivamente, conocida como el caso de ondas degeneradas en frecuencia y amplitud. Las condiciones de conservación de energía y momento también deben mantenerse y la ecuación que define la intensidad del segundo armónico se simplifica tomando la siguiente forma

$$I_{shg} = \chi^{(2)} I_0^2 L^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right), \quad (23)$$

dependiendo de la intensidad al cuadrado de los campos de entrada, $I_0 = A_p^2 + A_s^2$, con el grosor del cristal L y con la condición de empatamiento de fase dado por Δk .

2.4.3 Empatamiento de fases y no linealidad tipo I

La condición de empatamiento de fase es importante para obtener la mayor eficiencia posible en la generación de un fenómeno no lineal. Cuando $n_\omega = n_{2\omega}$, las

dos ondas viajan a la misma velocidad a través del medio, esto implica que todas las ondas generadas por los dipolos del medio están en fase por lo que la interferencia entre ellas siempre es constructiva. Por esta razón, cuando $\Delta k = 0$ se dice que se tiene la condición de empatamiento de fase. Esto se puede deducir de la ecuación (23) evaluando el argumento de la función sinc en 0, para la cual toma el máximo de su valor $\text{sinc}(0)=1$.

En medios centro simétricos, debido a la dispersión no se cumple la condición ($n_\omega \neq n_{2\omega}$) por lo que no se puede generar un segundo armónico eficiente. Para lograr cumplir la condición de empatamiento de fase se usan cristales birrefringentes, particularmente en el caso de esta tesis, un cristal uniaxial donde para una dirección de propagación dada siempre habrá dos estados de polarización diferentes, llamados polarización ordinaria y polarización extraordinaria con sus índices de refracción correspondientes. Aprovechando que el índice de refracción extraordinario del medio varía con la dirección de propagación, variando el ángulo de cristal entre la dirección de propagación de la luz y el eje de simetría es posible sintonizar la respuesta del cristal para conseguir un empatamiento de fase eficiente.

En este trabajo de tesis se utilizó un cristal de BBO uniaxial negativo (cuyo índice de refracción extraordinario es menor que el índice de refracción ordinario). Existen diferentes tipos de empatamiento de fase, los más comunes son el tipo I y tipo II. En el tipo I la polarización de ambos fotones de frecuencia ω es igual mientras que en el tipo II tienen polarización diferente. Para lograr el empatamiento de fase tipo I, y cumplir la condición de $n_\omega = n_{2\omega}$, es posible calcular el ángulo θ , respecto al eje óptico y el vector de onda \mathbf{k} , que debe estar el cristal utilizando la expresión de elipsoide de índices $\frac{1}{n_o(\omega)^2} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o(2\omega)^2} + \frac{\text{sen}^2(\theta)}{n_e(2\omega)^2}$ y obtener

$$\theta(\omega) = \text{sen}^{-1} \left(\sqrt{\frac{n_o(\omega)^{-2} - n_o(2\omega)^{-2}}{n_e(2\omega)^{-2} - n_o(2\omega)^{-2}}} \right). \quad (24)$$

Esta expresión indica que para cada frecuencia ω existirá un ángulo θ de empataamiento de fase. Para el caso de la suma de frecuencias el ángulo de empalamiento de fases será

$$\theta_{GSF} = \frac{\theta_P(\omega_P) + \theta_S(\omega_S)}{2}, \quad (25)$$

donde θ_P y θ_S , son los ángulos de condición de empataamiento de fase de los haces de stokes y de bombeo, calculados según la ecuación 24.

Capítulo 3. Enfoque espectral

Una vez conociendo los fundamentos descritos en el capítulo 2, en éste se aborda el tema central de esta tesis: el enfoque espectral. Primeramente, se explica qué se entiende por enfoque espectral haciendo una simple analogía con el enfoque de un haz de luz. Posteriormente, se explica cómo afecta dicho enfoque espectral en algunos procesos ópticos no lineales debido al ensanchamiento temporal de los pulsos producido en la técnica. Después se describen los modelos propuestos para simular el ancho espectral resultante de la interacción de dos pulsos ultracortos, mismos que se utilizan en esta tesis para discutir los resultados experimentales obtenidos en la generación de suma de frecuencias para la caracterización del enfoque espectral.

3.1 ¿Qué se entiende por enfoque espectral?

Para explicar qué es el enfoque espectral se hará una analogía con el enfoque de una fuente de luz. Es bien conocido que para obtener resolución espacial en un sistema de imágenes óptico (cámara, microscopios, etc.) se necesitan lentes u objetivos de microscopios con apertura numérica grande. Por otro lado, al enfocar la luz también se concentra la energía del haz en un área proporcional al límite de difracción determinado por la lente. La figura 7 (a) esquematiza cómo un haz de luz no enfocado, de diámetro mayor que el tamaño del objeto, no podrá resolver los detalles finos del objeto. Mientras que en la figura 7 (b) se muestra que utilizando un instrumento óptico (refractivo), sea este una lente o un objetivo de microscopio, se enfocará la luz y así se podrá resolver los detalles más pequeños. Ante este contexto, se puede pensar que para obtener resolución espectral necesitamos también alguna técnica óptica que lo lleve a cabo. Asimismo, la figura 7 (c) grafica un espectro Raman de alguna muestra de interés y la envolvente gaussiana del campo eléctrico resultante de la interacción de dos pulsos ultracortos sin chirp. Debido al gran contenido espectral viajando en fase de cada uno de los pulsos, su interacción hará oscilar diferentes frecuencias Raman del espectro al mismo tiempo y no habrá resolución espectral. Sin embargo, tal y como se argumentó arriba, si mediante

alguna técnica óptica es posible hacer que la interacción de los pulsos “enfoque” el contenido de frecuencias de los pulsos para excitar una sola banda Raman, existirá resolución espectral, tal y como se esquematiza en la figura 7 (d). En este caso, el instrumento óptico para enfocar el espectro es mediante la técnica de enfoque espectral; la cual se logra mediante la igualación del chirp de ambos pulsos, tal y como se describe en la figura 7 descrita más adelante.

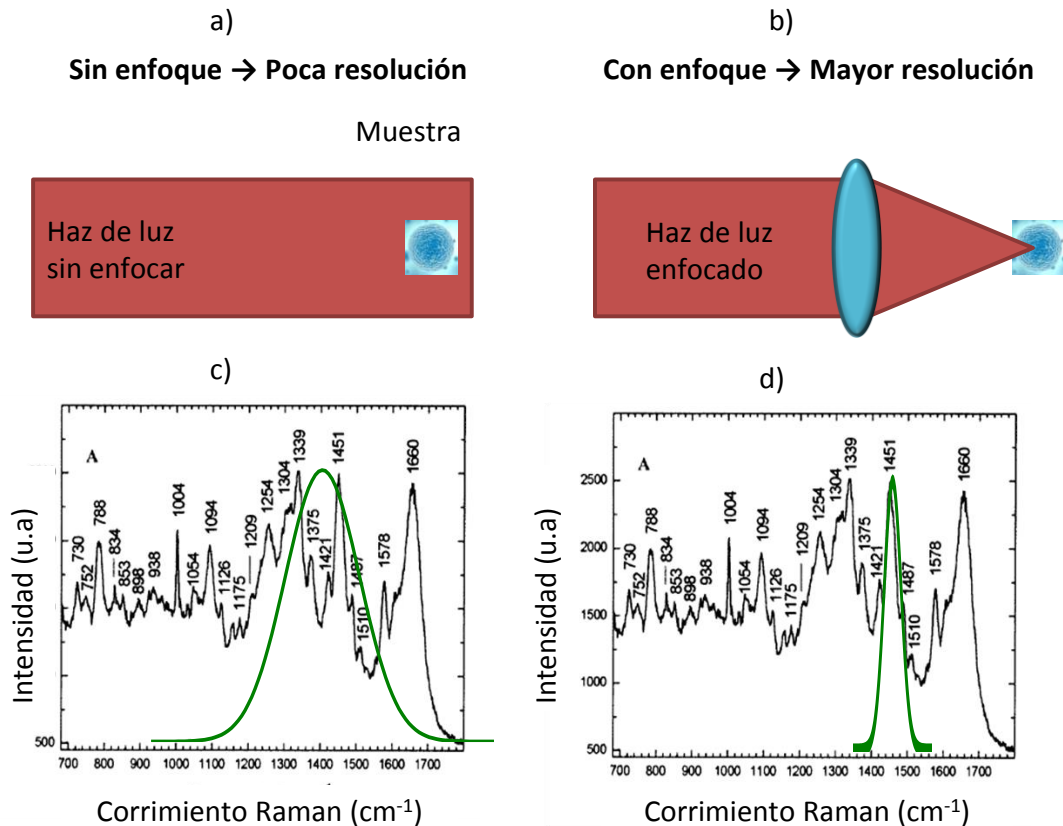


Figura 7. Al aplicar la técnica de enfoque espectral, se tiene mayor resolución espectral en las bandas Raman, así como en microscopía con un mayor enfoque, se tiene una mayor resolución espacial.

Como ya se mencionó en los antecedentes en la sección 1.2 del capítulo I, Hellerer *et al* (2004) demostró una forma de lograr una alta resolución en CARS por medio de una técnica llamada “enfoco espectral”, y recientemente, Israel Rocha, *et. al*, (2008) implementó una manera más eficiente de producir chirp utilizando vidrios de alto DVG (Rocha-Mendoza, Langbein, & Borri, Coherent anti-Stokes Raman microspectroscopy using spectral focusing with glass dispersion, 2008). Es

importante resaltar que en el presente trabajo de tesis, con el fin de minimizar la cantidad de ventanas ópticas utilizadas y con ello simplificar el arreglo experimental, se implementó la segunda técnica para generar el enfoque espectral pero con la diferencia de que la longitud de vidrio utilizada para ensanchar el pulso de ambos haces es la misma, lo que significa que la cantidad de chirp introducido en el pulso del haz de Stokes y el haz de bombeo son diferentes. El objeto de este estudio entonces es analizar las implicaciones que esto ocasiona en la resolución espectral a través de la suma de frecuencias ópticas.

3.2 Procesos ópticos no lineales con enfoque espectral

La figura 8 muestra el esquema para explicar el enfoque espectral. La figura 8 (a) representa el caso de pulsos limitados en transformada de Fourier y no tienen chirp ($\beta_P = \beta_S = 0$). En la ordenada se representa el tiempo, mientras que en la abscisa la frecuencia angular, la cual como se sabe es proporcional a la energía. Allí se pueden apreciar que la diferencia de frecuencias instantánea, ω_{DFI} (en gris), y la suma de frecuencia instantánea, ω_{SFI} (en azul), tienen anchos de banda amplios, como resultado de que todas las frecuencias contenidas en el pulso de bombeo, ω_P (en negro), y en el Stokes, ω_S (en rojo), están prácticamente en fase e interactúan todas entre sí.

La figura 8 (b) representa el caso en que a los pulsos se les ha producido el mismo chirp ($\beta_P = \beta_S$). En este caso ambas frecuencias de bombeo y Stokes, tienen pulsos ensanchados de igual duración e igual modulación lineal en sus frecuencias, tal y como se describió en la sección 2.2.1. Este caso fue estudiado por Rocha-Mendoza, *et. al.*, siendo el caso en el que se obtiene la máxima resolución espectral debido a que la diferencia de frecuencias instantánea es constante y su valor el mínimo posible.

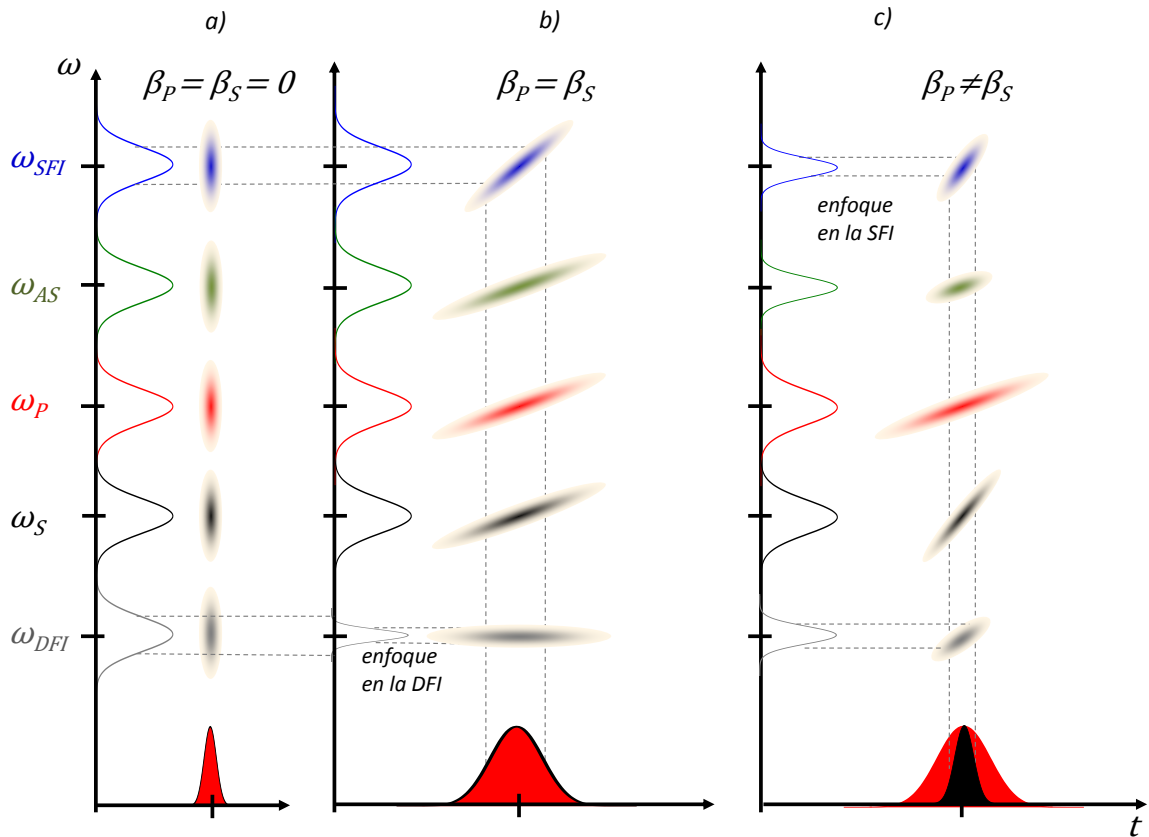


Figura 8. Esquema para explicar el enfoque espectral, a) interacción de dos pulsos sin chirp, b) enfoque espectral en DFI cuando el ancho de los pulsos es igual, c) enfoque espectral en SFI cuando la cantidad de chirp en ambos pulsos es diferente.

En esta tesis se estudia el caso mostrado en la figura 8 (c), donde el chirp en ambos pulsos es diferente $\beta_p \neq \beta_s$. En el caso de la diferencia de frecuencias (DFI) la diferencia entre las frecuencias instantáneas no será cero, por lo que el ancho espectral será mayor que en el caso en el que se tiene el mismo chirp, pero en la suma de frecuencias (SFI) la suma de las pendientes de las frecuencias instantáneas resulta en una disminución en el ensanchamiento del espectro en comparación a los dos casos anteriores, esto debido a un acotamiento espectral el cual se discutirá en el capítulo de resultados y discusiones.

3.3 Modelo simple para el enfoque espectral

En primera aproximación, se puede estimar el ancho espectral, tanto de la suma como de la diferencia de frecuencias, resultante de la interacción de dos pulsos simplemente utilizando la ecuación lineal de la frecuencia instantánea (10) para cada uno de los pulsos de bombeo y Stokes quedando

$$\omega_P(t) = \omega_{P0} + 2\beta_P t, \quad \text{y} \quad \omega_S(t) = \omega_{S0} + 2\beta_S t, \quad (26)$$

donde ω_{P0} y ω_{S0} , son las frecuencias centrales de cada pulso y $\beta_P = \beta_P(\lambda_{P0})$ y $\beta_S = \beta_S(\lambda_{S0})$, son los respectivos parámetros chirp. Entonces la Suma y Diferencia de Frecuencias Instantáneas (SFI y DFI, respectivamente) de las expresiones (26) está dada por

$$\omega_{\pm}(t) = (\omega_{P0} \pm \omega_{S0}) + 2(\beta_P \pm \beta_S)t, \quad (27)$$

pudiendo reescribirse de la forma

$$\omega_{\pm}(t) = \omega_{\pm,0} + 2(\beta_P - \beta_S)t, \quad (28)$$

siendo $\omega_{\pm}(t)$ la suma (con subíndice +) o diferencia (con subíndice -) de frecuencias instantánea linealmente modulada y $\omega_{\pm,0}$ la suma (con subíndice +) o diferencia (con subíndice -) de frecuencias instantánea centrales.

Finalmente, el ancho espectral de la interacción, la cual se expresará como Δ_{\pm} , se encuentra restando y evaluando la expresión (28) en $t = \pm\tau/2$, suponiendo que el ensanchamiento temporal de cada pulso es $\tau = \tau_P(L) \approx \tau_S(L)$ para así obtener

$$\Delta_{\pm} = \omega_{\pm}(\tau/2) - \omega_{\pm}(-\tau/2) \approx 2(\beta_P \pm \beta_S)\tau. \quad (29)$$

Dado que en los experimentos desarrollados en esta tesis, ambos haces recorren la misma longitud de vidrio, no existe el caso ideal $\beta_P = \beta_S$ lo cual produce

que el ancho espectral siempre será mayor que cero $\Delta_{\pm} > 0$, tal y como se puede ver en la ecuación (29) ya que los términos $(\beta_p - \beta_s)$ y $(\beta_p + \beta_s)$ serán distintos de cero. En este contexto, se debe tener en mente que el objetivo no es obtener el enfoque espectral óptimo, más bien es buscar el mejor enfoque espectral bajo la condición de que ambos pulsos se propaguen a través del mismo vidrio.

3. 4 Modelo de Fourier del enfoque espectral

Un modelo más formal para calcular el ancho espectral, tanto de la suma como de la diferencia de frecuencias, de la interacción de ambos pulsos es mediante el cálculo de la transformada de Fourier de la multiplicación de sus respectivos campos eléctricos, considerando además el efecto que produce la intensidad de ambos enfocándose a lo largo del medio durante su propagación. La figura 9 esquematiza el modelo donde se pueden apreciar las envolventes gaussianas del haz de bombeo y el haz Stokes, los cuales interactúan desfasados un tiempo t_0 . A partir de la expresión (9), tales campos se pueden expresar de la forma

$$E_P(t) = \varepsilon_{P0} \exp\left[-\frac{t^2}{\tau_P^2} - i(\omega_{P0} + \beta_P t)t\right] , \quad (30)$$

y

$$E_S(t - t_0) = \varepsilon_{S0} \exp\left[-\frac{t^2}{\tau_S^2} - i(\omega_{S0} + \beta_S(t - t_0))(t - t_0)\right], \quad (31)$$

respectivamente, donde ε_{P0} y ε_{S0} , son las magnitudes de los campos eléctricos; ω_{P0} y ω_{S0} , las frecuencias ópticas centrales; y el ancho temporal es τ_P y τ_S .

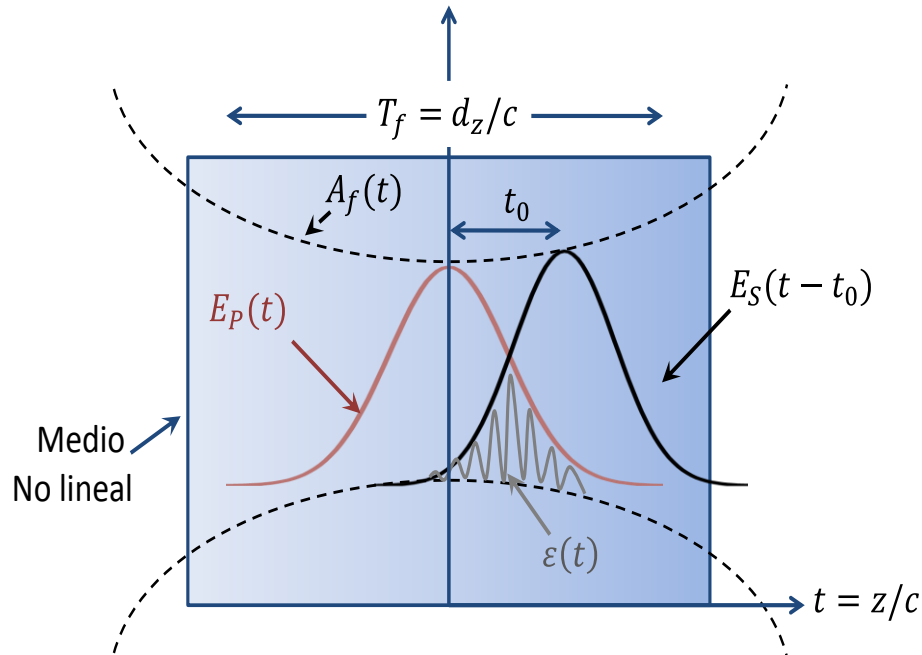


Figura 9. Esquema para explicar el modelo de Fourier para el enfoque espectral. Se muestra la interacción espacio-temporal de los campos de bombeo y Stokes, los cuales están modulados a lo largo de la propagación, el enfoque siendo máximo en el plano focal.

Por otro lado, para considerar el efecto que produce en el enfoque espectral la concentración de la intensidad a lo largo de la dirección de propagación; es decir el efecto que produce el enfoque de los haces, es importante tener en mente dos procesos físicos que suceden en el experimento. Primeramente, ambos pulsos son “estirados” del régimen de femto-segundos a unidades pico-segundos, por lo que su traslape espacio-temporal dentro del medio se lleva a cabo en alrededor $300 \mu\text{m}$ (ya que $\tau \times c \approx 1 \cdot 10^{-12} \text{ s} \times 3 \cdot 10^8 \frac{\text{m}}{\text{s}} = 300 \cdot 10^{-6} \text{ m}$). Segundo, al ser enfocados ambos pulsos con una lente (u objetivo de microscopio) dentro del medio no lineal, para concentrar su intensidad y hacer más eficiente el proceso óptico en cuestión, tal concentración de intensidad se desarrolla primordialmente en el área de enfoque tanto lateral (transversal a la propagación) como axial (en la dirección de propagación). Esta última, la axial, es la que interesa en este análisis misma que depende de la profundidad de foco de la lente (o resolución axial para un objetivo) y en el experimento es del orden del ensanchamiento de pulso. Por lo tanto, puesto

que la distancia de interacción entre pulsos y la profundidad de foco son equiparables, entonces el modelo debe considerar de alguna manera tal efecto de enfoque de intensidad. Para fines prácticos, y simplicidad en los cálculos, se considera aquí que la intensidad de ambos campos está modulada en la dirección z de una manera gaussiana de la forma.

$$A_f = e^{-\frac{t^2}{T_f^2}}, \quad (32)$$

donde T_f es, en este caso, el “tiempo de enfoque” en donde la intensidad es mayor a la intensidad medida al FWHM y es proporcional a la resolución axial, $d_z = 2n \frac{\lambda}{NA^2}$, quedando entonces

$$T_f = \frac{d_z}{c} = \frac{2n}{c} \frac{\lambda}{NA^2}. \quad (33)$$

Por lo tanto, el campo resultante de la interacción de ambos pulsos y la modulación espacio-temporal del enfoque se representa de la forma

$$\varepsilon(t)^\pm = \begin{cases} E_P(t)E_S(t)A_f; & \text{para } + \\ E_P(t)E_S^*(t)A_f; & \text{para } - \end{cases}, \quad (34)$$

donde, nuevamente, los signos ‘+’ y ‘-’ denotan la suma y diferencia de frecuencias, respectivamente. Sustituyendo entonces (30), (31) y (32) en (34) y después de un largo y minucioso proceso algebraico se obtiene la siguiente expresión del campo para la interacción de los pulsos

$$\varepsilon(t)^\pm = \varepsilon_{P0}\varepsilon_{S0} \exp\left[-\frac{t^2}{\tau_G^2} - \frac{(t_0^2 t - 2tt_0)}{\tau_S^2}\right] \exp[i(\beta_G t^2 + \omega_G t + \gamma_G)], \quad (35)$$

con los parámetros

$$\omega_G = \begin{cases} \omega_P + \omega_S - 2\beta_S t_0; & \text{para } + \\ \omega_P - \omega_S + 2\beta_S t_0; & \text{para } - \end{cases}, \quad \beta_G = \begin{cases} \beta_P + \beta_S; & \text{para } + \\ \beta_P - \beta_S; & \text{para } - \end{cases},$$

$$\gamma_G = \begin{cases} (\beta_S t_0 - \omega_S) t_0; & \text{para } + \\ -(\beta_S t_0 + \omega_S) t_0; & \text{para } - \end{cases} \quad \frac{1}{\tau_G^2} = \frac{1}{\tau_P^2} + \frac{1}{\tau_S^2} + \frac{1}{\tau_f^2}. \quad (36)$$

Para obtener el ancho espectral de la interacción del campo descrito en la expresión (35) se obtiene su transformada de Fourier considerando el caso en que ambos pulsos están perfectamente traslapados en espacio y tiempo, $t_0 = 0$, quedando

$$F(\omega) = \mathcal{F}\{f(t)|_{t_0=0}\} = I^\pm(\tau_G) \exp\left[-\frac{\tau_G^2}{2} \left(\frac{(\omega - \omega_G)^2}{1 + (\beta_G \tau_G^2)^2}\right)\right], \quad (37)$$

con

$$I^\pm(\tau_G) = \frac{\pi(\epsilon_{P0}\epsilon_{S0})^2 \tau_G^2}{\sqrt{1 + (\beta_G \tau_G^2)^2}}, \quad (38)$$

como la intensidad del espectro que depende de τ_G^2 .

Calculando entonces el ancho espectral, denotado por δ , de la expresión gaussiana (37), utilizando el criterio FWHM se tiene finalmente que

$$\delta_{FWHM}^\pm = \sqrt{8 \ln(2) [1/\tau_G^2 + (\beta_P \pm \beta_S)^2 \tau_G^2]} \quad (39)$$

Nótese que, a diferencia de los anchos calculados para la DFI y la SFI, en las expresiones (27) y (28), las expresiones (39) tienen un término extra que es inversamente proporcional a τ_G , mismo que considera además la N.A. del lente utilizado para realizar el enfoque espectral. En el capítulo de resultados y discusiones se simulan estas ecuaciones y se comparan con los resultados experimentales.

Capítulo 4. Materiales y Métodos

En éste capítulo se describen los materiales y métodos desarrollados en esta tesis. Se inicia describiendo las características de los materiales utilizados en el experimento, tales como las de los bloques de vidrio dispersivo para generar el chirp y las del cristal no lineal para realizar los experimentos de generación de suma de frecuencias ópticas. Posteriormente, se describen las características del equipo principal utilizado tales como el láser de Titanio:Zafiro y espectrofotómetro. Asimismo, se describen brevemente tanto el método de medición de pulsos ultracortos mediante la técnica de auto-correlación, como el programa para simular el enfoque espectral utilizando los modelos desarrollados en el capítulo 3 para este fin. Finalmente, se explica el arreglo experimental empleado para generar la suma de frecuencia y estudiar el enfoque espectral.

4.1 Materiales y equipo principal

4.1.1 Bloques de material dispersivo

La dispersión de velocidad de grupo en materiales transparentes (vidrio en particular) se determina por el número Abbe (Optics.inc, 2014)

$$V = \frac{n_D - 1}{n_F - n_C}, \quad (40)$$

donde n_D , n_F y n_C son los índices de refracción del material a las respectivas longitudes de onda de las líneas de Fraunhofer denominadas F (para 486.1 nm), D (para 587.6 nm) y C (para 656.3 nm), respectivamente. Nótese que la diferencia ($n_F - n_C$) en el denominador dicta la dispersión del material, siendo una menor diferencia cuando menor dispersión tenga el material; que de acuerdo a la ecuación (40) a mayor número de Abbe menor DVG. Dicho de otra manera, a menor número de Abbe mayor DVG del vidrio. Por ende, según la aplicación que se quiera dar al material será el valor de número de Abbe. Por ejemplo, para la fabricación de lentes simples se busca que el número sea mayor para evitar aberraciones cromáticas. En

contraste, puesto que en este proyecto de tesis se necesita ensanchar los pulsos, se busca un número de Abbe menor para tener una DVG suficiente. Tal es el caso del vidrio SF57. La clasificación de los materiales se realiza por medio de un diagrama de Abbe que se muestra en la figura 10 (SCHOTT.inc, 2014), donde cada material se representa por un punto dentro de la gráfica, cuyas coordenadas (x,y) son el número de Abbe e índice de refracción, respectivamente.

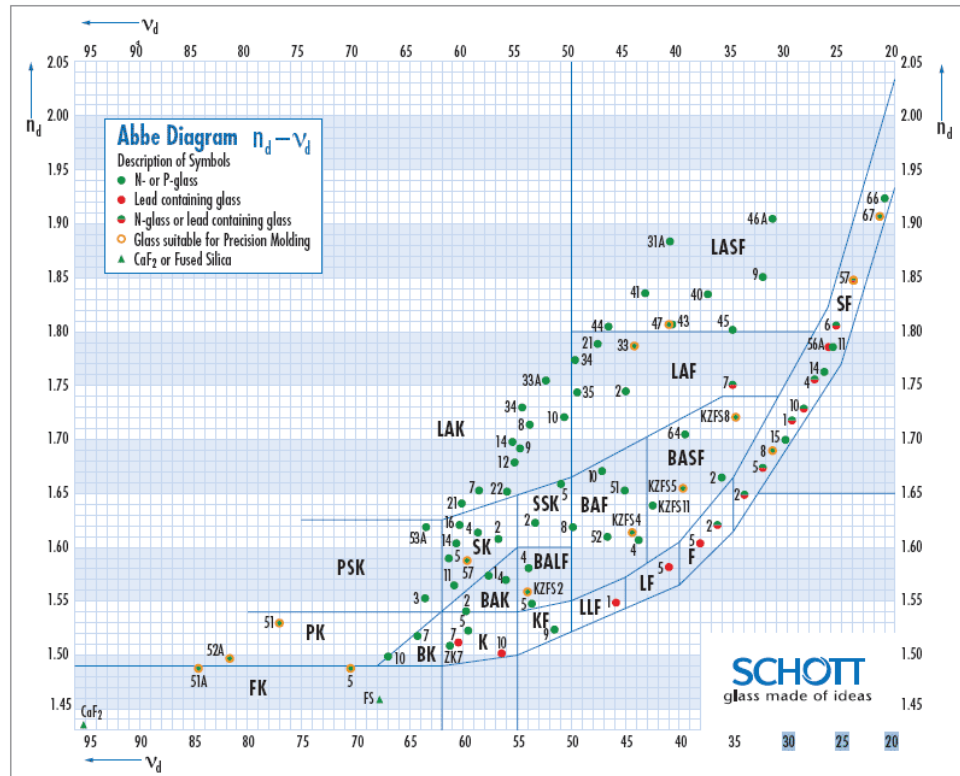


Figura 10: Diagrama de Abbe para la dispersión de vidrios introducido por primera vez por la compañía SCHOTT en 1923: Se muestran los números Abbe y el índice de refracción en diferentes tipos de vidrios.

Cabe mencionar que para este trabajo de tesis, en el taller de pulido óptico del CICESE se produjeron 5 barras de vidrio (“blocks”) con sección transversal de $1 \times 1 \text{ cm}^2$ y diferentes longitudes (2, 4 y 8 cm) como las mostradas en la figura 11. El tipo de vidrio utilizado inicialmente fue desconocido. Luego de una caracterización realizada para determinar el tipo de material dispersivo (descrita en el capítulo 5), se determinó que el vidrio es SF57. Este vidrio tiene las características necesarias para la aplicación perseguida en esta tesis; esto es, controlar el ensanchamiento temporal. En primer lugar tiene uno de los índices de refracción más grande de

1.847, para una longitud de onda de 530 nm, según la clasificación que muestra los vidrios existentes en el mercado. Asimismo tiene un número Abbe de los más bajos, de 23.8, lo cual, como ya se mencionó anteriormente se traduce en una alta dispersión. Para contrastar lo dispersivo del material, se puede comparar con el vidrio BK7, típicamente utilizado en la fabricación de lentes, el cual tiene un índice de refracción de 1.517 y un número de Abbe de 59.5, ayudando a evitar aberraciones cromáticas debido a la dispersión de velocidad de grupo.

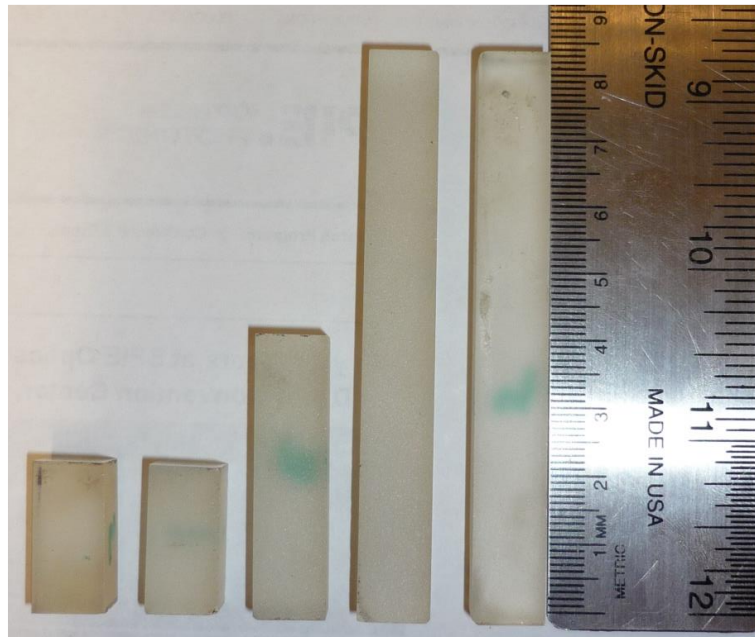


Figura 11. Juego de cinco barras de vidrio SF57 fabricadas en CICESE, con superficies de entrada y salida de $1 \times 1 \text{ cm}^2$ y longitudes de 8cm, 4cm y 2cm utilizadas en el experimento.

4.1.2 Cristal de BBO

Para realizar los experimentos de generación de suma de frecuencias ópticas se utilizó un cristal no lineal birrefringente y uniaxial negativo de Beta Borato de Bario (BBO por su fórmula química Beta Barium Borate BaB_2O_4), con una longitud de 2mm. Su transparencia está en el rango de los 190 nm a 3500 nm con un coeficiente de no linealidad $d_{\text{eff}}=1.94 \text{ pm/V}$ para generación de segundo armónico tipo I a 1064 nm y una eficiencia de hasta 45 % al usar empatamiento de fase tipo I para la generación de segundo armónico a 1064 nm y 532 nm (Coherent, 2002).

4.1.3 Láser de Titanio:Zafiro

En este proyecto de tesis se utiliza un láser de pulsos ultra cortos por amarre de modos conformado por un oscilador KML modelo GRIFFIN desarrollado por KM Labs Inc. (USA). Es bombeado ópticamente con un láser de estado sólido Verdi Coherent (desarrollado por Coherent Inc.) de 6 Watts y 532 nm de longitud de onda. La potencia promedio medida a la salida del láser cuando está pulsando es de 240 mw, el ancho espectral de los pulsos de salida es de 140 nm aproximadamente y cubre un rango de longitudes de onda de 720 nm a 860 nm con una frecuencia de repetición de 81 MHz.

4.1.4 Espectro-fotómetro

El espectro de los pulsos ultra cortos del láser y del haz de Stokes y haz de bombeo fue medido con un espectro fotómetro Stellarnet Black Comet modelo BLK-C-SR con un rango de medición de 200 a 1080 nm, detector CCD de 2048 pixeles, resolución de 0.75 nm y rango dinámico 2000:1 con 6 décadas (Stellarnet, 2014).

4.2 Métodos de medición y programación

4.2.1 Medición de auto-correlación y caracterización de los vidrios de alta DVG

La medición de un pulso ultracorto no es un asunto trivial, ya que no existe foto detector tan rápido como para una medición directa, la medición debe hacerse indirectamente. Para ello se utilizan instrumentos llamados auto-correladores los cuales trabajan bajo un esquema de interferómetro de Michelson. En la figura 12 se muestra el esquema del auto-correlador construido en el laboratorio de óptica no lineal de CICESE (ROJO, ARTHUR, Jamasbi, & Mohebi, 2003) donde se consigue una réplica del pulso ultracorto utilizando un divisor de haz 50:50 (50% de reflexión y 50% de transmisión). En uno de los brazos del interferómetro uno de los pulsos pasa por un espejo móvil para realizar un desplazamiento entre ellos. Finalmente, los pulsos se recombinan haciéndolos interferir en un medio no lineal. Midiendo la

intensidad del proceso no lineal respecto al desfaseamiento entre los pulsos, es posible realizar una traza de intensidad contra tiempo de traslape obteniendo así lo que se conoce como traza de auto-correlación. Los procesos no lineales utilizados pueden ser de segundo armónico o bien la absorción de dos fotones. En este experimento ambos pulsos se traslapan en un material semiconductor de un fotodiodo para la generación de absorción de dos fotones, la señal producida se observa en un osciloscopio Tektronix TDS 2024C con frecuencia de hasta 200 MHz a 200 Giga-muestras por segundo.

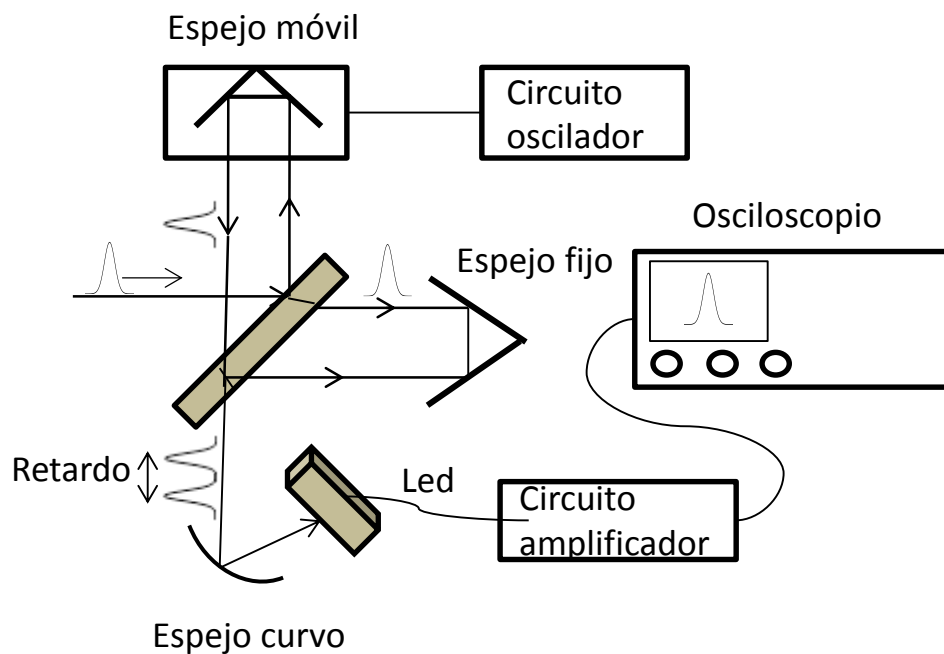


Figura 12. Esquema del auto-correlador por absorción de dos fotones en un LED.

Para calibrar la escala de tiempo mostrada en el osciloscopio con la duración real de la traza de auto-correlación se debe considerar que al mover el espejo una distancia d , la diferencia de camino óptico Δz cambia realmente por $2d$ ya que el pulso recorre un camino de ida y vuelta, esto implica un retraso temporal de $\Delta t = 2d/c$; hay que tomar esto en cuenta para calibrar el auto-correlador. Experimentalmente, en el osciloscopio se observa una señal periódica debida a la traza de autocorrelación producida en el fotodiodo con el desplazamiento del espejo. En el osciloscopio, la separación temporal de dos pulsos contiguos está dado

por una distancia, Δs , medida en milisegundos, al desplazar el espejo fijo una distancia en micrómetros, la separación Δs entre pulsos también cambia. Por lo que es posible relacionar el desplazamiento del micrómetro, Δz , con el tiempo, Δs , en el osciloscopio medido en milisegundos con el cambio tal y como se muestra en la figura 13. De esta manera es posible calibrar el dispositivo para transformar el ancho del pulso de la traza de auto-correlación de milisegundos a su valor real en femto-segundos.

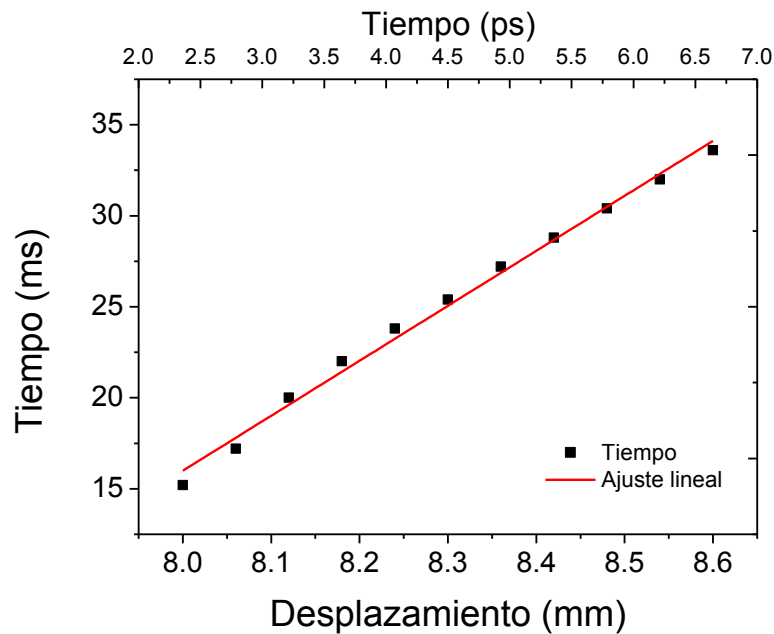


Figura 13. Curva de calibración del auto-correlador donde la pendiente de la recta es de $0.0302 \mu\text{m}/\text{ms}$.

En este experimento la pendiente del ajuste lineal de los datos obtenidos es de $0.0302 \mu\text{m}/\text{ms}$. Con esta pendiente es posible calcular la duración del pulso considerando un perfil gaussiano. El ancho del pulso se calcula a partir de la siguiente ecuación

$$\tau = \frac{2\tau_{ac}}{c\xi}, \quad (41)$$

donde c es la constante de la velocidad de la luz ($3 \times 10^8 \text{m/s}$), ξ es la constante de calibración del auto-correlador y τ_{ac} es el ancho del pulso de la traza de auto-correlación medida experimentalmente en el osciloscopio. Finalmente, considerando el perfil de forma del pulso, la duración real se calcula de la siguiente manera

$$\tau_p = \frac{\tau}{\sqrt{2}}, \quad (42)$$

donde τ_p es la duración real del pulso ultra corto.

Una vez grabada la señal en el osciloscopio se extrae con una unidad USB para ser procesada con el software Origin (desarrollado por OriginLab Corporation), donde aplicando un ajuste gaussiano se calcula el ancho del pulso observado en la traza de auto-correlación.

4.2.3 Programación para simular el enfoque espectral

Para simular el enfoque espectral se desarrolló un programa en la plataforma de programación de alto nivel Matlab versión R2013a desarrollada por The MathWorks Inc. El programa simula ambos modelos explicados en el capítulo 3, el modelo simple en base a las frecuencias instantáneas y el modelo de Fourier, respectivamente, para obtener el ancho espectral resultante de la suma y diferencia de frecuencias ópticas. El programa se escribe en forma de función cuyos parámetros de entrada son las características físicas de los pulsos ultracortos de bombeo y Stokes, tales como sus longitudes de onda central y sus anchos temporales iniciales (limitado en transformada). Asimismo recibe como parámetro de entrada la longitud de vidrio máxima a simular. Para calcular el índice de refracción del medio, la velocidad de grupo y la DVG se introducen los parámetros de entrada en la ecuación de Sellmeier (14). En este paso, para la caracterización inicial del vidrio se utilizaron diferentes coeficientes de Sellmeier de vidrios conocidos (BK5, SF11 y SF57). Posteriormente, una vez determinado el tipo de vidrio se mantuvieron los coeficientes del vidrio SF57.

Una vez calculadas las características dispersivas del medio, en el código del programa simplemente se transcriben las ecuaciones para el ancho temporal y el parámetro chirp (11, 12), para posteriormente calcular los anchos espectrales descritos en las ecuaciones (29, 39).

4.3 Arreglo experimental

La figura 14 muestra el arreglo experimental utilizado en este trabajo de tesis para estudiar el enfoque espectral usando suma de frecuencias. Para explicarlo se dividirá el funcionamiento del mismo en tres etapas: 1) Obtención del ensanchamiento temporal; 2) obtención de los haces de bombeo y Stokes mediante la división del contenido espectral de los pulsos; y 3) obtención de la generación de segundo armónico y suma de frecuencias ópticas.

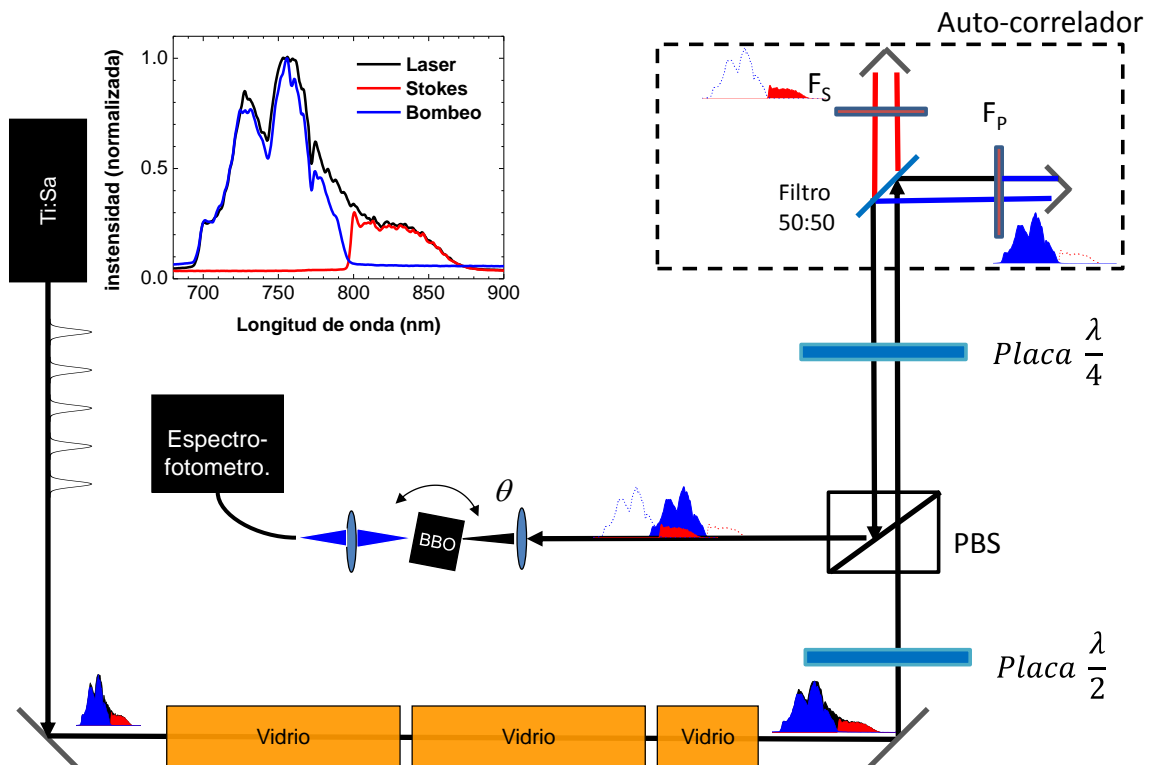


Figura 14. Arreglo experimental implementado para caracterizar el enfoque espectral con suma de frecuencias (SFG).

4.3.1 Ensanchamiento temporal de los pulsos

El arreglo experimental empieza con el tren de pulsos ultra cortos emitidos por el láser de Titanio:Zafiro. La potencia de salida, frecuencia de repetición y ancho temporal son de 250mw, 81 MHz y 100 fs respectivamente. El ancho espectral típico se muestra en la gráfica insertada en la figura 14. El haz de los pulsos es enviado por un par de espejos (se muestra solo uno) a través de los bloques de vidrio de SF57 para producir ensanchamiento temporal, según la cantidad de bloques de vidrio según la teoría vista en el capítulo 2. Ya ensanchados los pulsos pasan por un segundo espejo que envía el haz hacia un cubo divisor polarizador, PBS (PBS102, Thorlabs) cuya característica principal es transmitir luz con polarización \hat{p} (lineal horizontal) y reflejar luz con polarización \hat{s} (lineal vertical). El uso de una placa retardadora acromática de $\frac{\lambda}{2}$ (AHWP05M-980, Thorlabs) antes de incidir sobre el cubo polarizador sirve por un lado para controlar una transmisión eficiente de la potencia del haz y, a su vez, para variar la potencia en el experimento siguiendo la ley de Malus. Nótese que en el segundo caso la potencia del haz refleja hacia afuera del arreglo experimental (hacia la derecha del cubo) desperdiciándose esa energía. La luz con polarización \hat{p} transmitida por el PBS pasa por una placa retardadora acromática $\frac{\lambda}{4}$ (AQWP05M-980, Thorlabs) cuyo fin es transformar la luz a polarización circular. Posteriormente, el haz de pulsos es enviado al sistema de auto-correlación para caracterizar el ancho temporal tal y como se explicó en la sección 4.2.1.

4.3.2 División espectral de los pulsos

Una vez producido el ensanchamiento temporal de los pulsos, el haz de pulsos pasa al sistema de auto-correlación enmarcado con líneas segmentadas en la figura 14. Nótese que el sistema de auto-correlación en este experimento es modificado ligeramente para dividir el espectro del láser. La modificación consiste simplemente en agregar un par de filtros en los brazos del interferómetro dentro del auto-correlador tal y como se describe a continuación.

El haz de pulsos ultracortos con polarización circular proveniente del PBS y previamente ensanchados, entra al sistema de auto-correlación pasando inicialmente por un divisor de haz 50:50. Con esto la mitad de la energía es transmitida y la otra mitad reflejada. El haz de pulsos transmitido pasa por un filtro pasa altas (FEL0800, Thorlabs), denominado filtro de Stokes (Fs) en la figura 14, con una longitud de onda de corte de 800nm, transmitiendo >80% para longitudes de onda de 800 nm a 2200 nm y reflejando <20% para longitudes de onda 200 nm a 800nm (Thorlabs.inc, 2014). El haz de pulsos transmitido por el filtro Fs llega a un sistema retro-reflector, también conocido como esquina de cubo, formado por tres espejos, cuya característica principal es reflejar el haz en la de forma paralela al haz incidente independientemente de su ángulo de entrada. Dicho sistema retro-reflector está montado sobre un sistema motorizado (diseñado y construido para tal fin) el cual oscila periódicamente para cambiar el desplazamiento de pulsos y realizar el auto-correlación. Regresando, el haz Stokes del sistema retro reflector pasa otra vez por el filtro Fs para llegar nuevamente al divisor 50:50. Como podrá inferirse ya, este procedimiento sirve para la obtención del haz Stokes.

En contraste, el haz incidente del PBS que refleja por primera vez en el divisor 50:50, se utiliza para la obtención del haz de bombeo. Para esto dicho haz reflejado pasa un filtro pasa bajas (FES0800, Thorlabs), denominado filtro de bombeo (Fb) en la figura 14, con una longitud de onda de corte de 800nm, transmitiendo >80% para longitudes de onda de 560nm a 800nm y reflejando <20% para longitudes de onda 800nm a 1040nm. El haz de pulsos transmitidos por el filtro Fb llega a un segundo sistema retro-reflector, el cual está montado sobre una platina con desplazamiento mecánico de resolución micrométrica (Newport, M-SDS25). Regresando el haz de bombeo del sistema retro reflector pasa nuevamente por el filtro Fb para llegar al divisor 50:50, en donde nuevamente se transmite el 50% de la energía (25% de la energía total original) regresando al arreglo experimental.

4.3.3 Obtención de la suma de frecuencias ópticas

Una vez ensanchados los pulsos y dividido su espectro para generar los haces de bombeo y Stokes, ambos haces vuelven a pasar por la placa retardadora $\frac{\lambda}{4}$ transformándose la luz con polarización circular a una polarización vertical \hat{s} . Por lo que ambos pulsos son reflejados de manera eficiente al pasar nuevamente por el PBS. Aquí, los haces son reflejados al brazo izquierdo del arreglo donde un sistema de filtraje espacial (KT310, Thorlabs) que junto con una lente colimadora (Thorlabs LA1986-B) de distancia focal de 125mm, expande el haz a un diámetro aproximadamente de 1cm. El haz expandido incide a un objetivo de microscopio de 0.25 NA para enfocar la luz en un cristal no lineal de BBO (beta borato de bario). Ambos haces enfocados se traslapan espacial y temporalmente dentro del cristal, utilizando los espejos del arreglo experimental y el sistema retro reflector con la platina de precisión micrométrica (del haz de bombeo). Para obtener la suma de frecuencias primero se obtienen las respectivas señales de generación de segundo armónico de los haces de bombeo y Stokes. Esto con el fin de encontrar los respectivos ángulos de empatamiento de fases θ_p y θ_s , para calcular el ángulo de empatamiento de fases para la suma de frecuencias θ_{gsf} con la ecuación 25 del capítulo 2. Finalmente, los espectros de la generación de segundo armónico y generación de suma de frecuencias son medidos con el espectro fotómetro Stellarnet y extraídos los datos mediante el software SpectraWiz para finalmente ser procesados y graficados con el paquete computacional Origin para su análisis.

Capítulo 5. Resultados y discusiones

En este capítulo se presentan y discuten los principales resultados experimentales de este proyecto de investigación. Se inicia mostrando los resultados de la caracterización del vidrio con alta DVG, continuando por la obtención de los haces de bombeo y Stokes mediante la división espectral de los pulsos y la obtención de la generación de la suma de frecuencias. Posteriormente, se analiza el enfoque midiendo el ancho espectral de la GSF. Asimismo, se muestran los resultados de simulación obtenidos con los modelos teóricos desarrollados en el capítulo 3 de esta tesis para explicar el enfoque espectral con suma de frecuencias ópticas. Al final del capítulo se comparan y discuten los resultados experimentales y de simulación numérica.

5.1 Caracterización de los vidrios de alta DVG

El primer paso realizado en este proyecto de tesis fue la caracterización de las barras de vidrio fabricados en CICESE. En la figura 15 se muestra el resultado de la caracterización de donde se puede concluir que las barras de vidrio corresponden a un vidrio tipo SF57. Específicamente, la figura 15 (a) muestra el gráfico del ensanchamiento temporal medido experimentalmente en función de la longitud de vidrio. Allí también se grafican tres curvas de simulación obtenidas con la ecuación 11 utilizando tres diferentes coeficientes de Sellesmier, para SF6, SF11 y SF57, respectivamente. Tales tipos de vidrios fueron simulados debido a que se sabía de antemano que alguno de ellos podría ser el tipo de material. Los datos experimentales se muestran en marcadores circulares de color negro mientras que los simulados se distinguen con diferentes trazos de línea (Figura 15). Nótese que la curva con trazos segmentados, que corresponde a un vidrio SF57, se ajusta en buena medida a los datos experimentales.

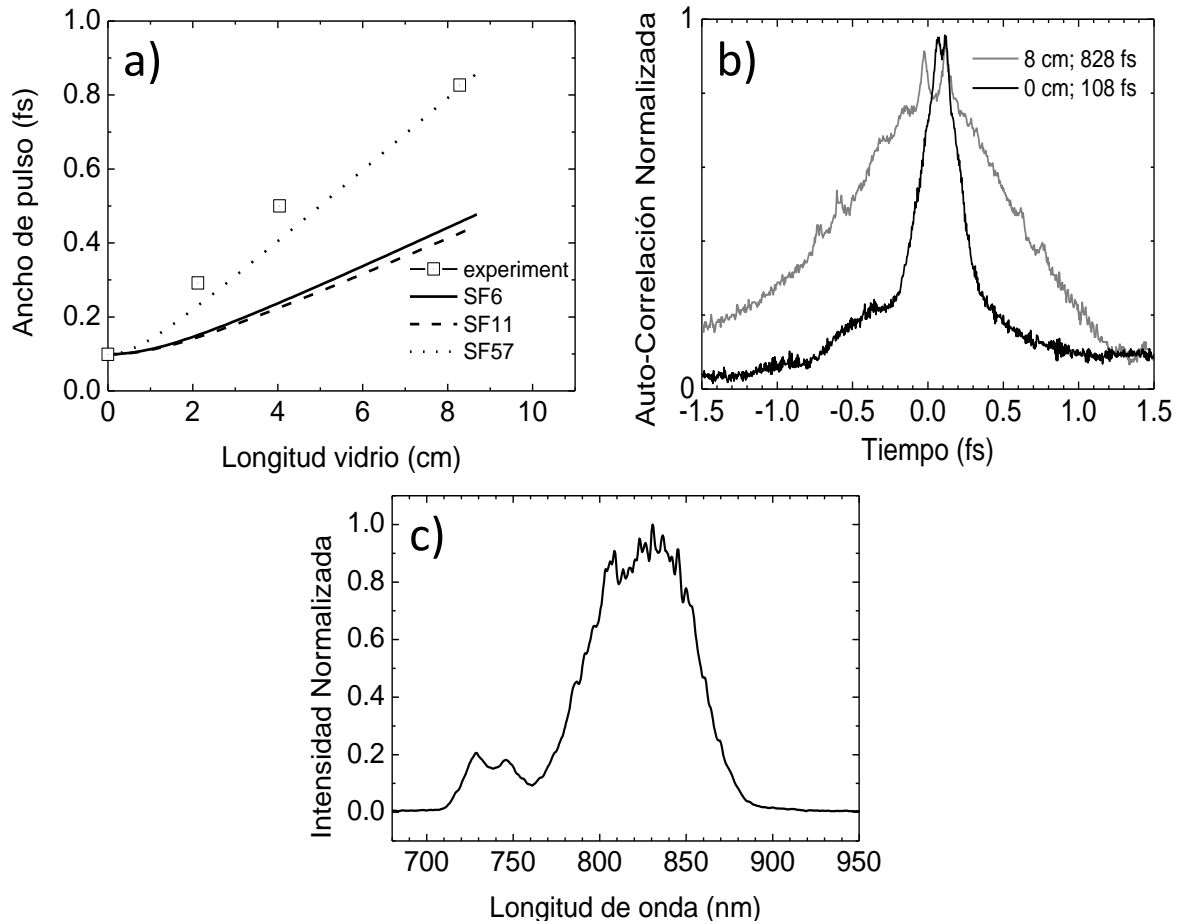


Figura 15. Caracterización de las barras de vidrio de alta DVG. (a) Ensanchamiento temporal dependiente de la longitud del pulso obtenido experimentalmente (cuadrados abiertos) y simulando en diferentes tipos de vidrio (SF6, SF11 y SF57) tal y como se indica en la figura. (b) Ancho temporal mínimo y máximo obtenido sin y con la longitud máxima de vidrio, respectivamente. (c) Espectro del láser utilizado para la caracterización del vidrio.

La figura 15 (b) muestra las trazas de auto-correlación de los pulsos sin vidrio (sin chirp) y con vidrio (con chirp), denotadas por la curva negra y gris, respectivamente. Puede observarse cómo la duración inicial de un pulso de 108fs se ensancha temporalmente aproximadamente ocho veces al propagarse 8 cm dentro del vidrio SF57 llegando a tener un ancho temporal de 0.83 ps. La figura 15 (c) muestra el espectro de los pulsos ultracortos utilizado en la caracterización del vidrio. Se puede ver que el espectro tiene una longitud de onda central de 825 nm y un ancho espectral de 100 nm, aproximadamente. Como se sabe el espectro se conserva durante la propagación, sin embargo, debido a la diferencia de índice de refracción del aire al medio, existe una reflexión en cada cara de entrada y salida de las barras de vidrio. Por ejemplo, cuando la potencia del haz de pulsos es de 206mW

a la entrada del vidrio de 8 cm, la potencia de salida de 181mW, teniendo una transmitancia del 88%, aproximadamente. Misma que puede ser mejorada si se depositan películas antirreflectoras en cada cara de entrada. (Según la teoría de las ecuaciones de Fresnel, la transmitancia es del 91%).

5.2 División espectral de los pulsos

Una vez caracterizado el tipo de vidrio se obtienen los haces de bombeo y Stokes, mediante la división espectral de los pulsos utilizando óptica pasiva, tal y como se describió en el capítulo de metodología experimental. La figura 16 muestra dos ejemplos de espectros típicos obtenidos a la salida del láser. En ambas figuras, (a) y (b), los espectros trazados con líneas negras corresponden al espectro medido en la salida de la fuente láser; mientras que los espectros trazados con líneas azules y rojas se miden posteriores a la división espectral correspondiendo a los espectros de los pulsos de bombeo y de “Stokes”, respectivamente.

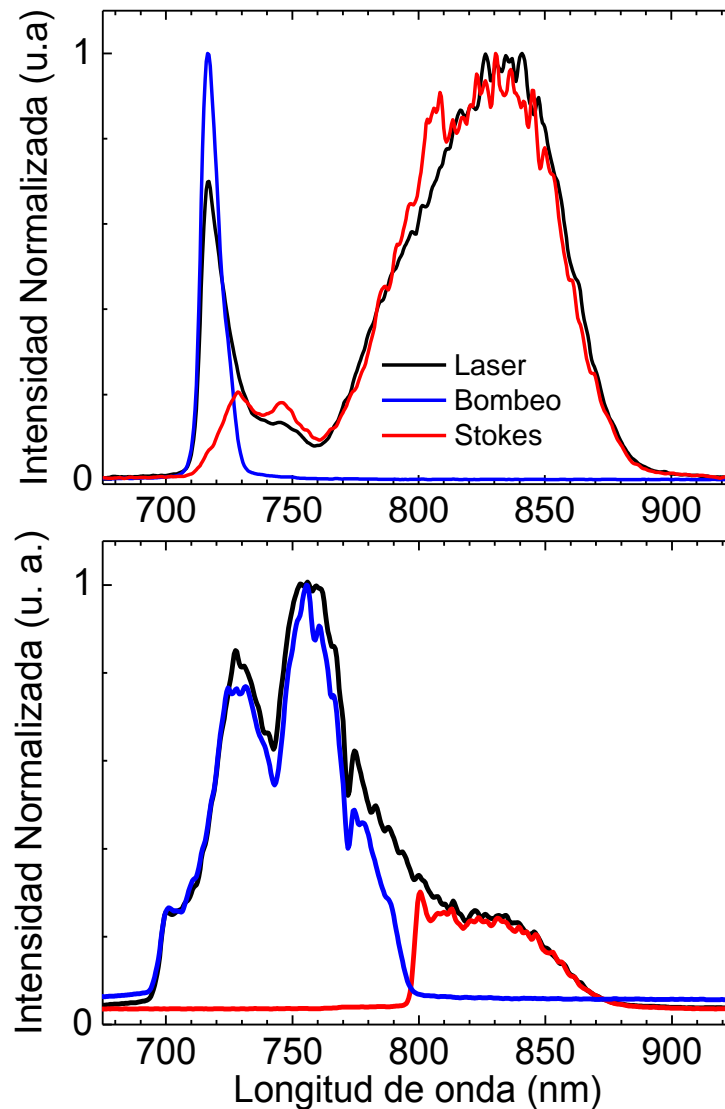


Figura 16 División espectral del haz de pulsos ultra cortos con ancho espectral amplio. Las figuras (a) y (b) muestran dos ejemplos de la división espectral obtenida en los experimentos. La línea negra muestra el espectro de la fuente láser, la línea roja muestra el espectro del haz de Stokes y la azul la del haz de bombeo.

Es importante mencionar aquí que el espectro obtenido puede cambiar dependiendo de la alineación de la cavidad láser. Lo cual puede ser contraproducente si no se tiene un buen control en la alineación de la cavidad. No obstante, para los fines experimentales de esta tesis se buscó siempre obtener el ancho espectral máximo. De acuerdo a las especificaciones del láser es posible obtener un ancho espectral de 170nm, aproximadamente, en su FWHM. La figura 16 (a) muestra un espectro para el haz de bombeo centrado en 716 nm, con ancho

espectral de 13nm, y un haz Stokes centrado en 832 nm, con ancho espectral de 70 nm, respectivamente. Por otro lado, en la figura 16 (b), se aprecia un haz de bombeo centrado en 750 nm, con ancho espectral de 68nm y un haz Stokes centrado en 830 nm, con ancho espectral de 56nm. Obsérvese cómo el peso de la energía entre los haces de bombeo y Stokes varía como consecuencia de una alineación diferente del sistema láser. En todo caso, independientemente de los cambios sufridos en el espectro de los pulsos durante el transcurso del proyecto, los haces obtenidos (Stokes y bombeo) fueron estables para realizar los diferentes experimentos.

5.3 Ensanchamiento temporal de los pulsos de bombeo y Stokes

Una vez conocidas las características del vidrio y dividido el espectro para obtener los haces de bombeo y Stokes, se midió ahora el ensanchamiento temporal en ambos pulsos utilizando los espectros de la figura 16 (b). Los resultados experimentales siguen siendo consistentes cuando se simula el vidrio SF57, tal y como se puede apreciar en la figura 17 (a), para el caso del haz de bombeo y el haz Stokes, líneas azules y rojas, respectivamente, donde nuevamente se grafica el ancho temporal como función de la longitud de vidrio. En esta ocasión se utilizó más cantidad de vidrio para, por un lado, corroborar la caracterización realizada en la sección 5.1 y, por otro lado, para ver el límite de ensanchamiento temporal del sistema.

Aquí vale la pena hacer una observación, según la Ecuación (8) vista en la sección 2.1, se sabe que entre más amplio es el espectro de un pulso ultracorto, menor será su duración temporal. Sin embargo, el ancho temporal correspondiente al espectro de salida del láser (cuadros negros) de la figura 17 (a), siempre es mayor que el ancho temporal de los haces de Stokes y del haz de bombeo, respectivamente, los cuales tienen un espectro más angosto que el del láser, como se puede apreciar en la figura 16 (b). Esto se debe a que la división espectral se realiza fuera de la cavidad láser, sin compensación de chirp, utilizando dos filtros ópticos y posterior a la introducción de DVG; es decir, no corresponden a espectros limitados en transformada. Sin embargo, si se comparan los pulsos de bombeo y Stokes por separado, se puede notar que la condición descrita en la ecuación (8) se

cumple sólo cuando no hay chirp. Esto se puede apreciar en las trazas de auto-correlación mostrados en la figura 17 (b), donde observa que la duración inicial (sin chirp) de los pulsos del haz de bombeo (contenido espectral más amplio según la figura 16 (b) es menor que la duración inicial del haz de Stokes (contenido espectral más angosto).

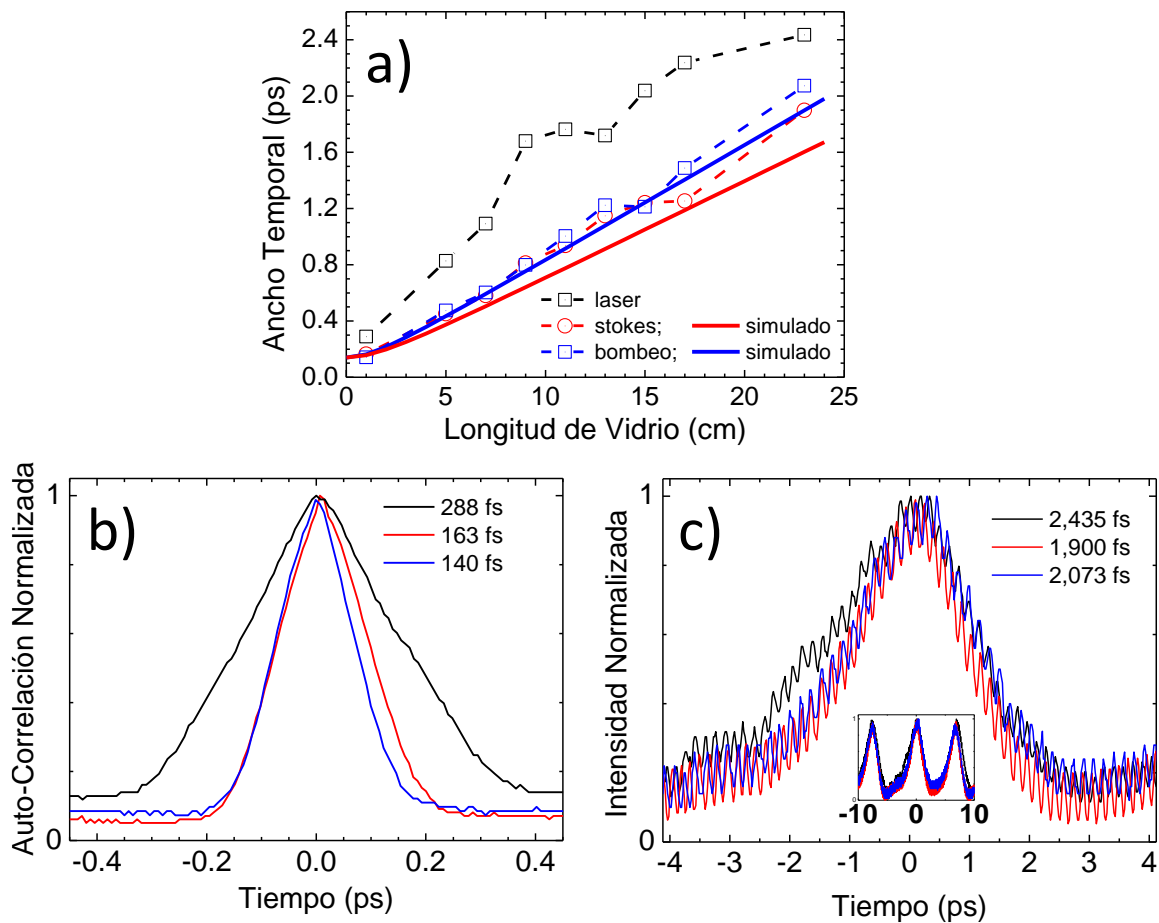


Figura 17. (a) Ensanchamiento temporal de los pulsos de bombeo y Stokes. Las líneas segmentadas con cuadros abiertos indican los datos experimentales, mientras que las líneas continuas representan los datos simulados considerando vidrio SF57. Trazas de auto-correlación mínima y máxima obtenidas sin material dispersivo (b) y con material dispersivo (c). El recuadro en (c) muestra el periodo la tasa de auto-correlación obtenida del osciloscopio.

El ancho temporal mínimo y máximo para cada haz se muestra en las trazas de auto-correlación de las Figura 17 (b) y (c), respectivamente. Los mínimos anchos temporales obtenidos en el experimento se muestran en la figura 17 (b), mismos que corresponden a las auto-correlaciones medidas sin vidrio, siendo estas de 0.163 ps, y 0.140 ps para el haz de bombeo y Stokes, respectivamente. Por otro lado, de la

figura 17 (c) se observa que el ancho máximo se obtuvieron con 24 cm de vidrio obteniendo 2.07ps para el haz de bombeo y 1.9ps para el haz Stokes, respectivamente. Nótese que el ensanchamiento temporal máximo está limitado por el periodo de frecuencia del motor en el que se muestra el espejo retro reflector del haz Stokes, el cual es de $T=40$ ms, que según la ecuación 41 y 42 para la conversión de desplazamiento a pico segundos da un periodo de $T \approx 8$ ps (Figura 17 (b)). Otro factor que influye en la medición del máximo ancho temporal es la múltiple reflexión sufrida por ambos haces en los vidrios SF57. Para conseguir 24 cm de vidrio se necesitan 5 bloques, es decir, existen 10 reflexiones, lo cual disminuye considerablemente la intensidad del haz y dificulta la medición. En la señal de intensidad de la auto-correlación se monta a una alta frecuencia presumiblemente debida a ruido electromagnético producido por la bobina del oscilador del espejo o por algún componente electrónico del circuito.

5.4 Generación de segundo armónico y suma de frecuencias

Los gráficos en la figura 18 y figura 19 muestran resultados de la generación de segundo armónico y generación de suma de frecuencias ópticas. Para estos experimentos se utilizó el espectro de la figura 18 (a), el cual tiene la particularidad de tener un hueco espectral en la mitad del espectro aproximadamente de entre 774 nm y 794 nm, con el fin de disminuir el ruido en la suma de frecuencias ocasionada por contribución de segundos armónicos de los haces de bombeo y Stokes, respectivamente. Para obtener esta característica espectral se utilizaron los filtros interferométricos pasa banda con frecuencia central en 755nm y ancho de banda de 40nm (Chroma, D755/40M) en el haz de bombeo y el filtro pasa altas (Thorlabs, FEL0800) en el haz de Stokes. En este caso particular, el bombeo tiene un ancho espectral de 12nm centrado en 762 nm, mientras que el Stokes tiene un ancho espectral de 35nm centrandolo en 820 nm.

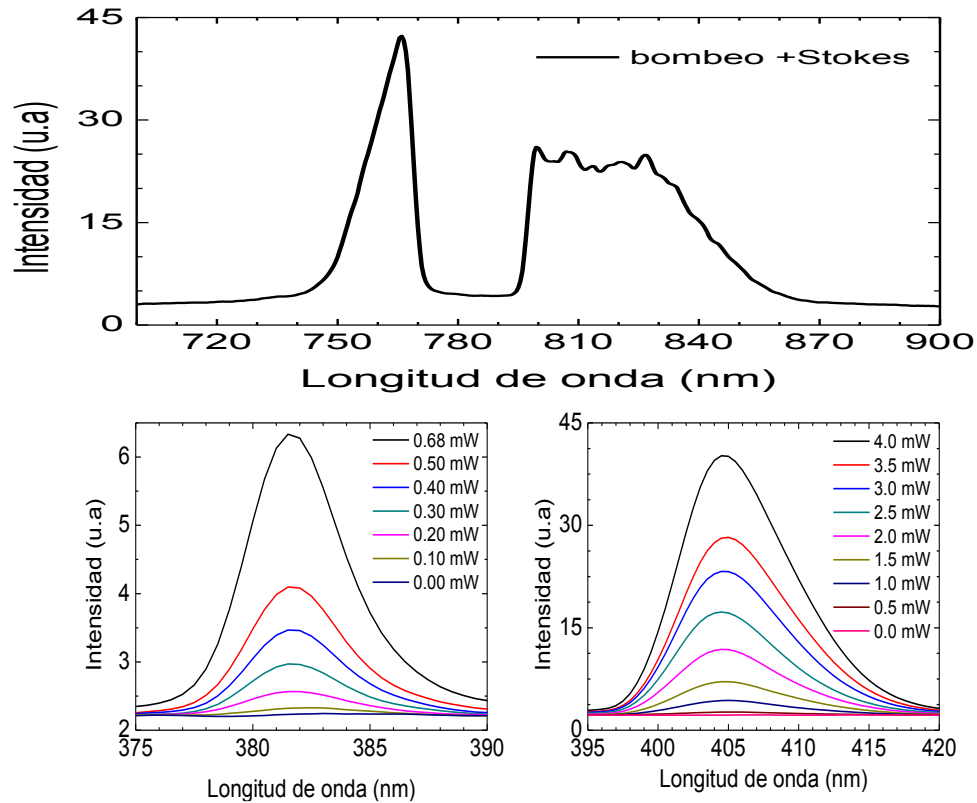


Figura 18. a) Suma de intensidades de los espectros de bombeo y Stokes, utilizados en experimentos de GSA y GSF. (b) Señal de segundo armónico del haz de bombeo (762nm) en función de la potencia de entrada. (c) Señal de segundo armónico del haz de Stokes (810nm) en función de la potencia de entrada.

La figura 18 (b) muestra el espectro de la señal de GSA para el haz de bombeo (762nm). El espectro de GSA está centrado en 381nm con un ancho aproximado de 4.63nm. Este ancho espectral depende entre otras cosas del ángulo de empataamiento de fases, razón por la cual el ancho espectral no es exactamente la mitad del ancho espectral de haz de bombeo. Se muestra la dependencia de la GSA con respecto a la potencia del haz fundamental que va de 0 mW a 0.68 mW, con pasos de 0.1 mW. La potencia fue variada antes del sistema de colimación mostrado en la figura 14 del arreglo experimental, utilizando la combinación de una placa retardadora y un polarizador. Similarmente, la

Figura 18 (c) muestra el espectro de la señal de GSA para el haz de Stokes (810nm) cuyo espectro de GSA está centrado en 405nm con un ancho aproximado de 10nm.

Para este caso la potencia del haz fundamental va de 0 mW a 4 mW, con pasos de 0.5mW.

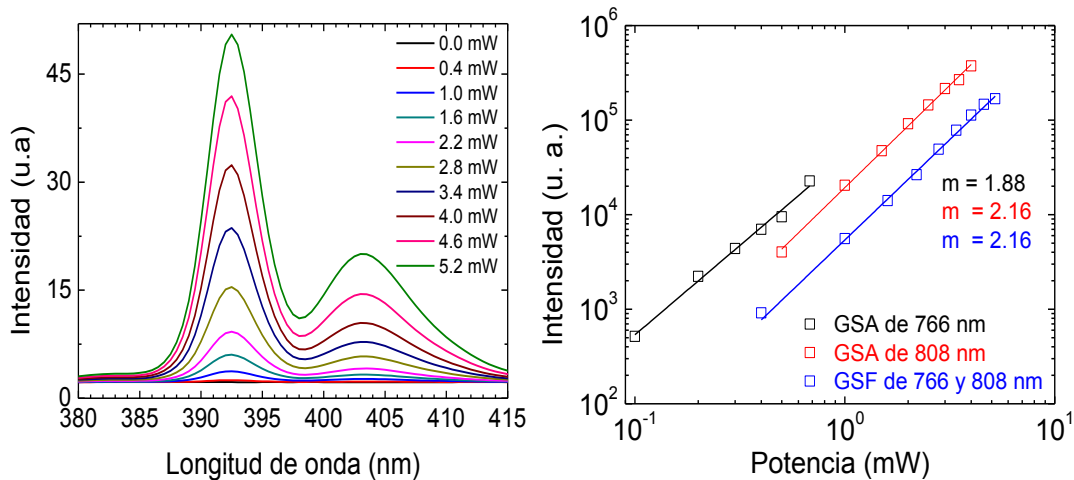


Figura 19(a) Señal de suma de frecuencias en función de la potencia de entrada. (b) Dependencia de segundo orden del fenómeno de generación de segundo armónico y suma de frecuencias.

La dependencia cuadrática con característica de los procesos no lineales de segundo orden se muestra en la figura 19 (b), donde se grafica en escala logarítmica la dependencia en la potencia incidente de las señales de GSA y de GSF. Las pendientes obtenidas para la GSA son de 1.88 para el haz de bombeo y 2.16 para el Stokes, mientras que la pendiente en la GSF es de 2.16, idealmente la pendiente debe ser exactamente dos, pero debido a que en la medición del segundo armónico el filtro pasaba algo de luz del haz fundamental, además de variaciones en el detector, el valor de las pendientes no es exactamente dos, pero por su aproximación se demuestra que ambos procesos son efectivamente procesos ópticos de segundo orden. La intensidad de GSA en esta figura 19 (b) se obtiene calculando numéricamente el área bajo la curva en cada uno de los espectros mostrados en las figuras 18 (b) y (c), para los haces de bombeo y Stokes, respectivamente. En contraste, para obtener la intensidad de GSF, se toma en cuenta sólo el espectro de la suma de frecuencias de la figura 19 (a), sin tomar en

cuenta el área de la curva a la derecha de la GSF debido a la señal de GSA del haz Stokes. Nótese que la GSF está por debajo de las rectas de GSA en la figura 19 (b), esto indica que la eficiencia de generación de suma de frecuencias es menor que la de generación de segundo armónico, lo cual tiene sentido debido a que no se puede cumplir una condición de empatamiento de fase perfecta para dos longitudes de onda diferentes al mismo tiempo.

5.5 Análisis del enfoque espectral utilizando GSF

5.5.1 Resultados experimentales

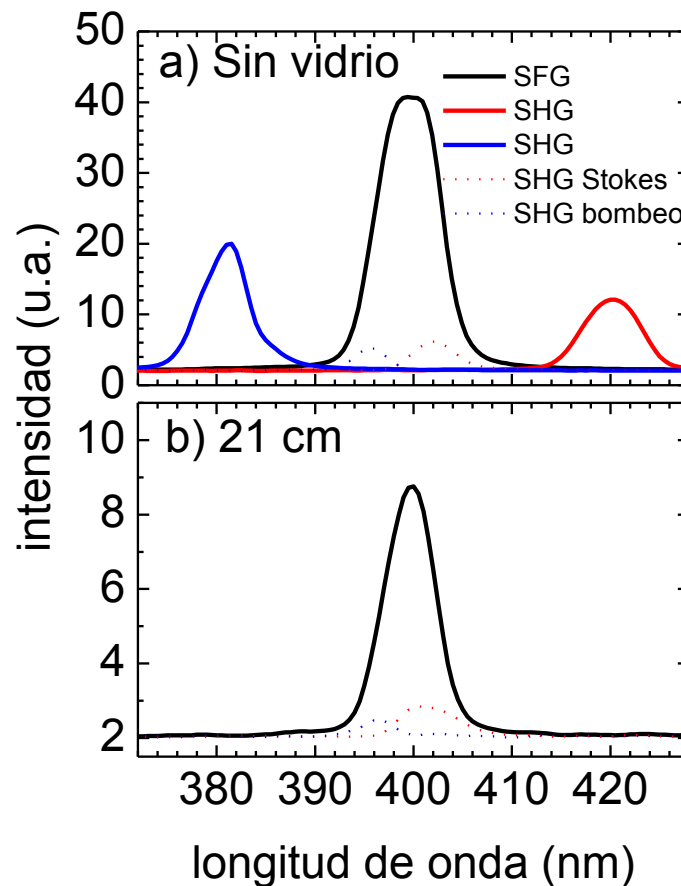


Figura 20 Efecto del enfoque espectral en la suma de frecuencias, a) espectro fuente, b) segundo armónico y suma de frecuencias sin vidrio dispersivo, c) suma de frecuencias con vidrio dispersivo.

En la figura 20 se muestra el efecto que produce la técnica del enfoque espectral en el ancho espectral de la generación de suma de frecuencias, para este experimento se utilizaron los haces de bombeo y Stokes de la figura 16 (b). La figura 20 (a) muestra el espectro de la GSF (línea negra) y los respectivos espectros de GSA para el caso en que no existe ensanchamiento temporal. Las líneas punteadas rojas muestran la contribución de la GSA del haz de Stokes obtenida al ángulo de empatamiento de fases de la GSF, mientras que las líneas punteadas azules corresponden a la contribución del haz de bombeo. Tales contribuciones se consideran despreciables para efectos del cálculo del ancho espectral. Nótese que en este caso la GSF es mayor a las GSA de los haces interactuantes, esto se debe a que se utiliza una N.A. menor ($N.A.=0.03$) en estos experimentos, lo cual significa más discriminación en frecuencias angulares, en contraste con la N.A de 0.25 utilizada en los experimentos de la figura 18 y Figura 19, respectivamente, la cual al tener mayor N.A. el abanico de frecuencias angulares es mayor dando posibilidad a que se generen los segundos armónicos por falta de discriminación angular. Como se verá más adelante la N.A. toma un papel importante en la interacción no lineal de las componentes espectrales entre los haces de bombeo y Stokes.

La figura 20 (b) muestra el espectro de la GSF junto con los respectivos espectros de GSA (líneas segmentadas), para el caso en que se ha producido un ensanchamiento temporal de 1.8 ps (utilizando 21 cm de vidrio). Claramente se observa que el efecto de propagar el haz de pulsos a través del vidrio produce que el ancho espectral de la GSF disminuya; siendo más angosto respecto al ancho espectral medido sin vidrio. Esto se ve más claro en la figura 21 (a) donde se muestran tres diferentes espectros de GSF obtenidos para una longitud de vidrio de 1cm, 9cm y 21 cm (0.15ps, 0.8 ps y 1.8 ps), respectivamente. El ancho del espectro de la GSF medido después de propagar los haces por 21 cm (línea azul), es menor que el espectro obtenido al propagarlos a través de 9cm (línea roja) y a su vez es menor que el espectro obtenido al propagarlos en 1 cm de vidrio.

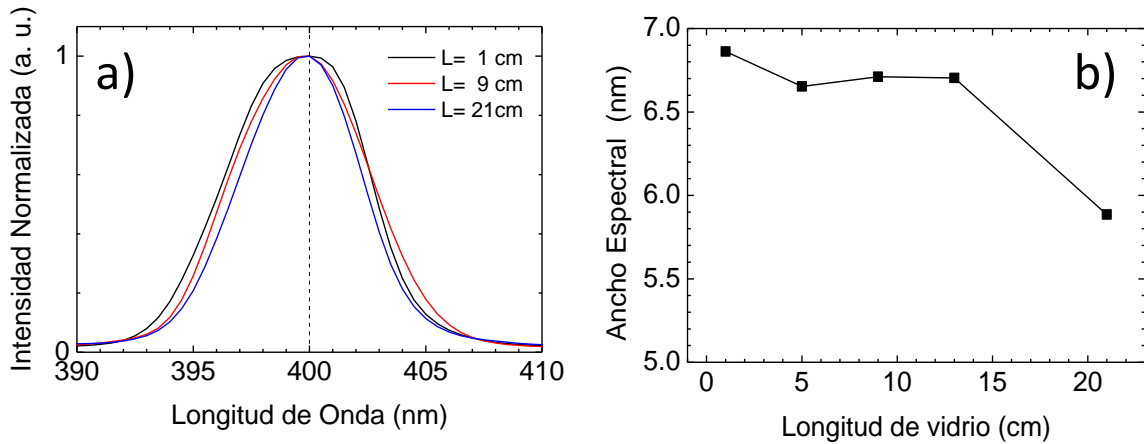


Figura 21. Efecto del enfoque espectral en la GSF. (a) Espectros de GSF para 3 longitudes de vidrio. (b) Ancho espectral de GSF en función de la longitud de vidrio.

En la figura 21 (b) se muestran anchos espectrales de la GSF para otras condiciones de longitud de vidrio. Este ancho espectral se obtiene ajustando los espectros de GSF a una gaussiana de donde se calcula numéricamente el FWHM resultante. Se puede apreciar que a partir de los 15cm el efecto es más pronunciado.

La cuestión es, por qué ocurre esto, la explicación no es sencilla pero puede deberse a que es una consecuencia del ensanchamiento temporal asimétrico entre los pulsos bombeo y de Stokes al propagarlos por la misma cantidad de vidrio. Tal ensanchamiento asimétrico significa tener un pulso con duración mayor que otro, por lo que el traslape espacio temporal de los pulsos no logra producir la suma de frecuencia para todas las componentes espectrales. Afectando por tanto el ancho espectral del proceso.

5.5.2 Resultados de simulación teórica con el modelo de frecuencias instantáneas

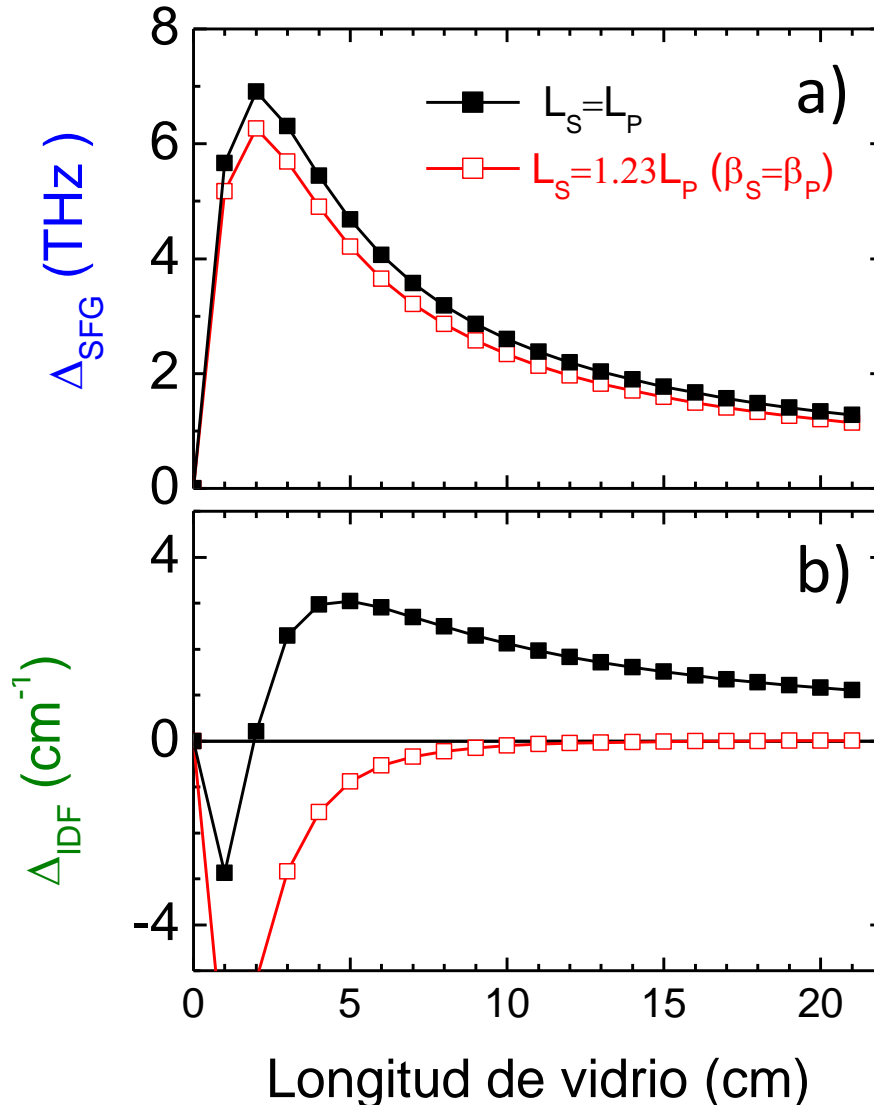


Figura 22. Modelo del enfoque espectral en base a las frecuencias instantáneas. Ancho espectral de la GSFI (a) y para la GDFI (b) para el caso de igual chirp (rojo) e igual longitud de vidrio (negro)

Tal y como se mencionó en el capítulo 2, el primer modelo para simular el enfoque espectral considera sólo las frecuencias instantáneas de los pulsos ultracortos interactuantes. La figura 22 muestra el resultado que arroja este modelo para la simulación del ancho espectral en la generación de suma de frecuencias instantánea (a) y la generación de la diferencia de frecuencias instantánea, GSFI y

GDFI, respectivamente. Se muestran dos casos: cuando ambos haces pasan por la misma cantidad de vidrio (como en el experimento, $\beta_p \neq \beta_s$), y cuando pasan por longitudes de vidrio diferente de tal manera que los parámetros β de ambos pulsos sea igual y, por lo tanto, tienen el mismo chirp ($\beta_p = \beta_s$). Analizando primero GDFI de la figura 22 (b), ya que es la que dicta al final de cuentas la resolución espectral en un proceso Raman, puede notarse que cuando $\beta_p = \beta_s$, el ancho espectral de la GDFI (medida en números de onda cm^{-1}) tiende a cero, mientras que si $\beta_p \neq \beta_s$, el ancho espectral tiende a un ancho espectral mayor lo que se traduce como menor resolución espectral. De allí que es necesario agregar más cantidad de vidrio para obtener una buena resolución espectral.

En contraste, según este modelo para la suma de frecuencias mostrado en la figura 22 (c), no hay cambio aparente en el comportamiento del ancho espectral, tanto para el caso $\beta_p = \beta_s$ como para $\beta_p \neq \beta_s$, disminuyendo considerablemente con el aumento en la longitud del vidrio. Es decir, según este modelo existe un enfoque espectral. No obstante, como se podrá ver en la figura 21 (b) el modelo no se ajusta con la realidad de los datos, puesto que la disminución del ancho espectral no es muy pronunciada.

5.5.3 Resultados de simulación teórica con el modelo de Fourier

Debido a que el modelo de frecuencias instantáneas no estuvo muy acorde con los datos experimentales. Se realizó un modelo más completo donde se considera la suma y la diferencia de frecuencias de los campos eléctricos de los pulsos ópticos interactuantes. Para después aplicar la transformada de Fourier y medir el ancho espectral del campo resultante. En este modelo también se considera el efecto del enfoque físico del objetivo del microscopio. Los detalles del modelo se explicaron en el capítulo 3 y la figura 23 muestra los resultados obtenidos. Para comparar los resultados numéricos con resultados experimentales, fue necesario repetir el experimento ilustrado en la figura 21 (b), no solo para diferentes longitudes de vidrio sino también para diferentes N.A. y estudiar el efecto que produce esto en el ancho espectral de la GSF.

Según el modelo de Fourier mostrado en la figura 23 (a), además de existir la dependencia en el ancho espectral de la GSF con la longitud de vidrio, debe existir una fuerte dependencia con el enfoque físico. Es decir el ancho espectral disminuye conforme se aumenta la N.A. Y esta disminución se acentúa con la longitud de vidrio utilizado para ensanchar los pulsos. Para la simulación se utilizan aperturas numéricas de 0.25 (rombos), 0.15 (círculos), 0.1 (triángulos) y 0.03 (cuadrados), respectivamente.

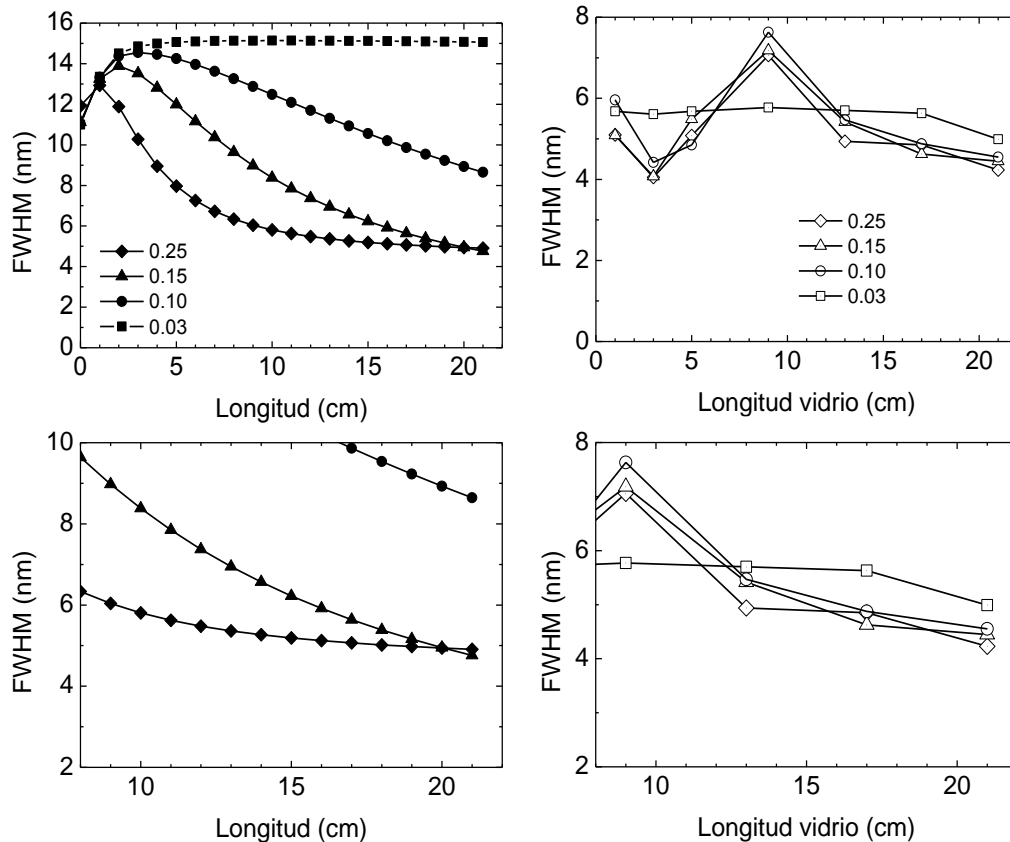


Figura 23 Comparación del modelo teórico de Fourier del enfoque espectral con los datos experimentales. a) resultados teóricos del ancho espectral de la GSF en función de la longitud de vidrio y de la N.A.. b) Caso experimental del inciso a). c) resultados teóricos centrados a partir de 15cm de vidrio. d) Caso experimental del inciso c donde se resalta el efecto del enfoque espectral.

La figura 23 (b) muestra los datos experimentales para las mismas aperturas numéricas simuladas en la figura 23 (a). Si bien los resultados experimentales siguen teniendo discrepancia con la simulación, sí existen comportamientos similares en las curvas de simulación y experimentales. Por ejemplo, para el caso de mínima N.A.

(ver marcadores cuadros), existe una tendencia constante tanto para el caso teórico como para el caso experimental. Al igual que en la simulación en el experimento también se puede observar que a mayor N.A. menor es el ancho espectral, sobre todo en los casos en que se produce chirp con los vidrios de mayor longitud.

La figura 23 (c) y la figura 23 (d), muestran un aumento de la figura 23 (a) y (b), respectivamente. Aquí se puede observar la similitud entre las curvas simuladas y experimentales para los casos de aperturas numéricas de 0.15 (triángulos) y 0.25 (rombos), respectivamente. Existe analogía tanto en la magnitud del ancho espectral como en el comportamiento de las curvas las cuales tienden a cruzarse conforme aumenta la cantidad de vidrio. Hay ciertas discrepancias todavía entre el modelo teórico y los datos experimentales ya que en el modelo no se considera la DVG propia del cristal BBO ya que al tener un cristal largo (de 2mm) y pulsos de 1-2ps (200 a 400 μ m) los haces involucrados sufren un corrimiento entre ellos lo que puede producir generación de suma de frecuencias ópticas diferentes por el hecho de tener diferente traslape espacio-temporal a lo largo del cristal, mientras que en el modelo propuesto se considera que los haces viajan siempre igualmente traslapados.

Capítulo 6. Conclusiones

Sobre la base de las caracterizaciones, resultados experimentales y simulaciones, desarrollados en este trabajo de tesis se desprenden varias conclusiones. Para expresarlas de una manera ordenada y concisa serán divididas según los objetivos perseguidos en la tesis. Al final del capítulo se menciona el trabajo a futuro.

6.1 En cuanto a la caracterización del vidrio

- Se concluye que las barras de vidrio utilizados para realizar el ensanchamiento temporal es un vidrio tipo SF57, con índice de refracción 1.847 y número Abbe 23.8.
- El máximo ensanchamiento temporal logrado en los experimentos, utilizando una longitud de vidrio de 23 cm, fue de 2.07ps y 1.9ps, respectivamente.
-
- Para el caso del ensanchamiento temporal con longitudes de vidrio mayores a 23, cm no fue posible medir en el osciloscopio debido a que el periodo de oscilación del espejo oscilante dentro del sistema de auto-correlación es de 40 ms lo cual limitó el máximo ensanchamiento temporal a 2.4 ps. Se considera que esto no es una limitante en los experimentos de enfoque espectral ya que, según la literatura, solo es necesario tener pulsos de 1-2ps para obtener enfoque espectral y resolver oscilaciones moleculares tipo Raman.

6.2 En cuanto a la división del contenido espectral de los pulsos láser

- Mediante el uso de óptica pasiva simple tal y como lo son los filtros interferómetros (dicróicos), es posible dividir el contenido espectral de los pulsos ultracortos para obtener los haces de bombeo y Stokes, necesarios para experimentos de mezcla de ondas y/o experimentos de bombeo y prueba en medios ópticos no lineales, como lo son las Generación de Suma de Frecuencias y efecto Raman estimulado CARS.
- Dependiendo del espectro original en la salida y los filtros interferómetros utilizados se obtuvieron diferentes pares de pulsos de bombeo y Stokes. Por ejemplo, pulsos de bombeo de 13nm de ancho centrados en 716nm junto con pulsos Stokes de 70nm de ancho centrados en 832nm (Figura 16 (a)). O bien, pulsos de bombeo de 68nm de ancho centrados en 750nm junto con pulsos Stokes de 56nm de ancho centrados en 830nm (Figura 16 (b)), o finalmente pulsos de bombeo de 12nm de ancho centrados en 762nm y pulsos de Stokes de 35nm de ancho centrados en 820nm (Figura 17 (a)).

-

6.3 En cuanto al estudio del enfoque espectral suma de frecuencias

- Es posible monitorear el enfoque espectral a través de la medición del ancho espectral obtenido por la suma de frecuencia del haz de bombeo y el haz Stokes, respectivamente. El indicativo para que esto suceda es cuando el ancho del espectro de la suma de frecuencias inicia a disminuir.
- De los dos modelos presentados en esta tesis para estimar el ancho espectral en la suma de frecuencias, el modelo de Fourier resulta ser más adecuado. Para mejorar este modelo hay que considerar en un futuro agregar el efecto que produce la DVG misma del cristal BBO; ya que al tener un cristal largo (de 2mm) y pulsos de 1-2ps (200 a 400 μ m) los haces involucrados sufren un corrimiento entre ellos lo que puede producir la generación de suma (y

diferencia) de frecuencias ópticas diferentes por el hecho de tener diferente traslape espacio-temporal a lo largo del cristal.

- Utilizando el modelo de Fourier se encuentra el efecto que produce el enfoque (o N.A.) de la lente utilizada para experimentos de generación de suma de frecuencias ópticas de haces con chirp. Haces fuertemente enfocados concentran la intensidad en un espacio menor induciendo un efecto de filtraje espectral dando como resultado anchos espectrales menores. En contraste, en la diferencia de frecuencia la N.A. no parece afectar este ancho espectral y por ende al enfoque espectral.

6.4 Trabajo a futuro

Tal y como se expresó en la introducción, el estudio realizado en esta tesis es con el fin de tener la técnica de enfoque espectral para implementar microscopía Raman estimulado. Por ende, el trabajo a futuro es acoplar ambos haces para desarrollar dicha técnica de microscopía. Pero no solo eso, ya que uno de los resultados originales de esta tesis fue conocer que, a diferencia del uso de objetivos de microscopio con N.A. alta (>0.25), el uso de objetivos con una N.A. baja no afecta el enfoque espectral en la GDF, se contempla en un futuro aplicar este conocimiento para aplicar otra técnica de microscopía moderna basada en una hoja de luz láser (Olarte, y otros, 2012). En esta técnica se utilizan objetivos de microscopio con N.A. baja para generar una hoja de luz, en lugar de realizar un barrido del láser enfocado. La colección de la señal se realiza de manera transversal con una CCD aumentando por lo tanto la rapidez en la toma de imágenes. Asimismo, se extenderá este estudio y repetirán algunos de los resultados experimentales aquí mostrados para su reproducción y mejora con el objeto de escribir y someter un artículo científico.

Lista de referencias

- Bancelin, S., Aimé, C., Coradin, T., and Schanne-Klein, M. C. (2012). In situ three-dimensional monitoring of collagen fibrillogenesis using SHG microscopy. *Biomedical Optics Express*, 3(6), 1446-1454.
- Begley, R. F., Harvey, A. B., and Byer, R. L. (1974). Coherent anti-Stokes Raman scattering. *Applied Physics Letters*, 25(7), 387-390.
- Boyd, R. W. (2008). *Nolinear Optics*. USA: Elsevier Inc.
- Cheng, J. X., and Xie, X. S. (2004). Coherent Anti Stokes Raman Scattering Microscopy: Instrumentation, Theory and Applications. *The Journal of Physical Chemistry B*, 108(03), 827-840.
- Coherent. (2002). *BBO*. Recuperado el 2014 de Agosto de 2014, de Coherent: https://www.coherent.com/downloads/BBO_DS.pdf
- Duncan, M. D., Reintjes, J., and Manuccia, T. J. (1982). Scanning coherent anti-Stokes Raman microscope. *Optics Letters*, 7(8), 350-352.
- Freund, I., Deutsch, M. O. S. H. E., and Sprecher, A. A. R. O. N. (1986). Connective tissue polarity. Optical second-harmonic microscopy, crossed-beam summation, and small-angle scattering in rat-tail tendon. *Biophysical journal*, 50(4), 693-712.
- Gusachenko, I., Latour, G., and Shanne-Klein, M.-C. (2010). Polarization-resolved Second Harmonic microscopy in anisotropic thick tissues. *Optics Express*, 18(18), 19339-19352.
- Gusachenko, I., Latour, G., and Schanne-Klein, M. C. (2010). Polarization-resolved Second Harmonic microscopy in anisotropic thick tissues. *Optics Express*, 18(18), 19339-19352.
- Hellerer, T., Enejder, A. M., and Zumbusch, A. (2004). Spectral focusing: High spectral resolution spectroscopy with broad-bandwidth laser pulses. *Applied Physics Letters*, 85(1), 25-27.
- Helmchen, F., and Denk, W. (2005). Deep tissue two-photon microscopy. *Nature Methods*, 2(12), 932-940.
- Lotem, H., Jr, L., T., R., and Bloembergen, N. (1976). Interference between Raman resonances in four-wave difference mixing. *Physical Review A*, 14(5), 1748.
- Maker, P. D., and Terhune, R. W. (1965). Study of Optical Effects Due to an Induced Polarization Third Order in the Electric Field Strength. *Physical Review Letters*, 137(3A), A801.

- Olarte, O. E., Licea-Rodriguez, J., Palero, J. A., Gualda, E. J., Artigas, D., Mayer, J., and ... Loza-Alvarez, P. (2012). Image formation by linear and nonlinear digital scanned light-sheet fluorescence microscopy with Gaussian and Bessel beam profiles. *Biomedical optics express*, 3(7), 1492-1505.
- Onorato, R. M., Muraki, N., Knutsen, K. P., and Saykally, R. J. (2007). Chirped coherent anti-Stokes Raman scattering as a high-spectral- and spatial-resolution microscopy. *Optics Letters*, 32(19), 2858-2860.
- Optics.inc, E. (2014). *Optical Glass*. Recuperado el 22 de Agosto de 2014, de Edmund Optics: <http://www.edmundoptics.com/technical-resources-center/optics/optical-glass/>
- Paschotta, D. R. (2010). *RP Photonics Encyclopedia*. Recuperado el 25 de Agosto de 2014, de http://www.rp-photonics.com/ultrashort_pulses.html
- Prasad, P. (2003). *Introduction to Biophotonics*. New Jersey: John Wiley and Sons.
- Raub, C. B., Suresh, V., Krasieva, T., Lyubovitsky, J., Mih, J. D., Putnam, A. J., and ... George, S. C. (2007). Noninvasive Assessment of Collagen Gel Microstructure and Mechanics Using Multiphoton Microscopy. *Biophysical Journal*, 92(6), 2212–2222.
- Rocha-Mendoza, I., Langbein, W., and Borri, P. (2008). Coherent anti-Stokes Raman microspectroscopy using spectral focusing with glass dispersion. *Applied Physics Letters*, 93(20), 201103.
- Rocha-Mendoza, I., Yankelevich, D. R., Wang, M., Reiser, K. M., Frank, C. W., and Knoesen, A. (2007). Sum Frequency Vibrational Spectroscopy: The Molecular Origins of the Optical second-order nonlinearity of collagen. *Biophysical*, 93(12), 4433-4444.
- ROJO, R. R., ARTHUR, M. G., Jamasbi, N., and Mohebi, M. (2003). Diseño y construcción de un autocorrelador de pulsos de femtosegundos usando absorción de dos fotones en un diodo luminiscente. *Revista Mexicana de Física*, 49(003).
- SCHOTT.inc. (Enero de 2014). *SCHOTT.inc*. Recuperado el 20 de Agosto de 2014, de SCHOTT corporation: http://www.schott.com/advanced_optics/english/download/schott-abbe-diagram-nd-vd-january-2014-eng.pdf
- Stellarnet. (2014). *Stellarnet Inc*. Recuperado el 20 de Agosto de 2014, de www.stellarnet.us/techspec.htm#techspec
- Thorlabs.inc. (2014). *EdgePass filters*. Recuperado el 12 de Septiembre de 2014, de Thorlabs: <http://www.thorlabs.de/catalogpages/V21/813.PDF>

- Tsien, R. Y. (1998). The green fluorescent protein. *Annual review of biochemistry*, 67(1), 509-544.
- Weiner, A. M. (2009). Ultra fast optics. En WILEY (Ed.), *Ultra fast optics* (págs. 64-67). New Jersey: John Wiley and Sons, Inc., Hoboken.
- Zimmerley, M., Younger, R., Valenton, T., Oertel, D. C., W. J., and Potma, E. O. (2010). Molecular orientation in Dry and Hydrated Cellulose Fibers: A Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy Study. *The Journal of Physical Chemistry B*, 114(31), 10200-10208.
- Zumbusch, A., Holtom, G. R., and Xie, X. S. (1999). Three-Dimensional Vibrational Imaging by Coherent Anti-Stokes Raman Scattering. *Physical Review Letters*, 82(20), 4142.