



Universidad  
Carlos III de Madrid  
[www.uc3m.es](http://www.uc3m.es)

UNIVERSIDAD CARLOS III DE MADRID

## TESIS DOCTORAL

# OPTIMIZACIÓN EFICIENTE DE PROCESOS DE INTERACCIÓN LASER-MATERIA MEDIANTE CONFORMACIÓN TEMPORAL DE PULSOS ULTRACORTOS

**Autor:**

**Inocencio Marcial Galván Sosa**

**Director:**

**Luis Moreno Lorente**

**Director:**

**Javier Solís Céspedes**

DEPARTAMENTO DE INGENIERÍA DE SISTEMAS Y  
AUTOMÁTICA

Leganés, Julio 2014

# Abreviaturas

AE - Algoritmo Evolutivo  
AG - Algoritmo Genético  
APD - Avalanche Photodiode  
B - Barrido  
CMA-ES - Covariance Matrix Adaptation  
CPA - Chirped Pulse Amplification  
D - número de nodos  
DE - Differential Evolution  
EE - Estrategia Evolutiva  
FROG - Frecuency Resolved Optical Gating  
f - Distancia focal  
 $\mathcal{F}$  - Fourier Transform  
FFT - Fast Fourier Transform  
fs - Femtosegundo  
FWHM - Full With Half Maximun  
 $\gamma$  - Gamma, angulo de salto de refinamiento  
GS - Gerchberg-Saxton  
GW - GigaWatio  
ICFO - Institut de Ciences Fotoniques  
ITO - Indium Tin Oxide  
km/s - Kilómetros por segundo  
 $\lambda$  - Lambda, longitud de onda  
MA - Molecular Alignment  
MEB - Microscopía Electrónica de Barrido  
MIIPS - Multiphoton Intrapunse Interference Phase Scan  
MODS - Multiple One-Dimensional Search  
mJ - miliJulio  
ms - milisegundo  
mW - miliWatio  
 $\mu m$  - micrómetro  
NC - Nano Cristal  
nm - nanómetro  
OSA - Optical Spectrum Analizer  
pc - probabilidad de cruce  
pm - probabilidad de mutacion  
QCL - Quantum Control Landscape  
QCT - Quantum Control Theory  
rad - Radián  
S - Salto  
SA - Simmulated Annealing

SG - Seguidor de Gradiente  
SH - Second Harmonic  
SHG - Second Harmonic Generation  
 $\sigma$  - Sigma, distancia de salto  
SLM - Spatial Light Modulator  
TPA - Two Photon Absorption  
TOD - Third Order Dispersion  
V - Voltio



# Índice general

<b>Resumen</b>	<b>I</b>
<b>Agradecimientos</b>	<b>VII</b>
<b>Abreviaturas</b>	<b>IX</b>
<b>1. Introducción</b>	<b>1</b>
1.1. Introducción . . . . .	2
1.2. Objetivos y metodología . . . . .	7
1.3. Estructura . . . . .	8
<b>2. Fundamentos</b>	<b>11</b>
2.1. Introducción . . . . .	12
2.2. Pulso láser ultracorto y conformación temporal . . . . .	12
2.2.1. Pulso láser ultracorto . . . . .	12
2.2.2. Conformación temporal . . . . .	14
2.3. Efectos ópticos no-lineales . . . . .	16
2.4. Optimización . . . . .	19
<b>3. Soporte Experimental</b>	<b>27</b>
3.1. Introducción . . . . .	28
3.2. Sistema láser . . . . .	29
3.3. Sintetizador de pulsos . . . . .	32
3.3.1. Configuración del sintetizador de pulsos . . . . .	32
3.3.2. El modulador espacial de luz, <i>SLM</i> . . . . .	36
3.3.3. Limitaciones del sistema . . . . .	40
3.4. Caracterización temporal con PG-FROG . . . . .	43
<b>4. Soluciones Propuestas</b>	<b>47</b>
4.1. Introducción . . . . .	48
4.2. Modelo del espacio de control . . . . .	48

4.2.1.	Capacidad de control sobre la fase . . . . .	48
4.2.2.	Espacio de manipulación de parámetros . . . . .	50
4.2.3.	Elección del espacio de búsqueda . . . . .	50
4.2.4.	Codificación de la fase . . . . .	50
4.2.5.	Interpolación de puntos de control de la fase . . . . .	52
4.2.6.	Limitaciones por el número de nodos utilizados . . . . .	55
4.2.7.	Multimodalidad intrínseca . . . . .	55
4.3.	Algoritmo Genético . . . . .	56
4.3.1.	Funcionamiento general . . . . .	57
4.4.	Differential Evolution . . . . .	60
4.4.1.	Funcionamiento general . . . . .	61
4.4.2.	Variantes usadas . . . . .	63
4.5.	Algoritmo propuesto: <i>MODS</i> . . . . .	65
4.5.1.	Bases formales de <i>MODS</i> . . . . .	69
4.5.2.	Descripción del algoritmo . . . . .	70
4.5.3.	Algoritmo <i>MODS</i> completo . . . . .	77
4.5.4.	Ilustración de funcionamiento . . . . .	80
<b>5.</b>	<b>Resultados Experimentales</b>	<b>85</b>
5.1.	Restricciones experimentales . . . . .	86
5.1.1.	Ruido intrínseco . . . . .	86
5.1.2.	Ruidos emergentes. Efectos no deseados de la manipulación de fase . . . . .	91
5.1.3.	Conclusiones . . . . .	95
5.2.	Generación de formas de onda arbitrarias . . . . .	97
5.2.1.	Descripción experimental . . . . .	97
5.2.2.	Resultados experimentales . . . . .	99
5.2.3.	Conclusiones . . . . .	105
5.3.	Compresión de pulsos . . . . .	107
5.3.1.	Absorción de dos fotones . . . . .	107
5.3.2.	Generación de Segundo Armónico en la nano-escala . . . . .	116
5.3.3.	Conclusiones . . . . .	122
5.4.	Alineamiento molecular . . . . .	123
5.4.1.	Descripción experimental . . . . .	125
5.4.2.	Resultados experimentales . . . . .	128
5.4.3.	Conclusiones . . . . .	134
5.5.	<i>FROG</i> con desajuste temporal . . . . .	135
5.5.1.	Descripción experimental . . . . .	135
5.5.2.	Resultados experimentales . . . . .	136
5.5.3.	Conclusiones . . . . .	151

5.6. Visualización del espacio de soluciones . . . . .	153
<b>6. Conclusiones y desarrollo futuro</b>	<b>157</b>
6.1. Conclusiones . . . . .	158
6.2. Desarrollo Futuro . . . . .	160
<b>A. Publicaciones asociadas</b>	<b>161</b>
A.1. Publicaciones y Comunicaciones a Congresos Internacionales relacionadas con el desarrollo y utilización de Algoritmo “Multiple, one-dimensional search” (MODS) . . . . .	162
A.2. Publicaciones y Comunicaciones a Congresos Internacionales relacionadas con la utilización de técnicas de conformación temporal de pulsos ultracortos . . . . .	163
<b>Bibliografía</b>	<b>165</b>

# Capítulo 5

## Resultados Experimentales

## 5.1. Restricciones experimentales

En esta sección se muestran los problemas mas importantes que nos hemos encontrado, y podido corregir en buena medida, relacionados con la fidelidad del observable experimental. A lo largo de los capítulos previos ya se han visto algunas limitaciones sobre el control que existen por el funcionamiento del *SLM* (apartados 3.3.3, 4.2.1), por el número de nodos de control usados (apartado 4.2.6).

Desde el punto de vista de un problema de optimización, nuestra capacidad de obtener una respuesta del sistema directamente relacionada, y reproducible, con las acciones de control que ejercemos es imperativo. Sin embargo, en todo sistema real existen perturbaciones que generan una variación en su respuesta que nos aleja de este ideal. Es por ello que esta sección aborda los problemas derivados del ruido experimental al que se ha tenido que hacer frente. Entendemos ruido en un sentido amplio, cómo todo aquello que nos perturba o distorsiona nuestra observación.

Hemos dividido los problemas de ruido en dos variedades, que no son ni absolutas ni excluyentes entre sí:

- **Intrínsecos.** Serán aquellos problemas inherentes la naturaleza de nuestro sistema experimental.
- **Emergentes.** En esta categoría se han introducido aquellos problemas que surgen a partir de la interacción del pulso láser a lo largo de su camino óptico, antes de generar el observable.

El ruido intrínseco va a provocar perturbaciones sobre la señal medida, es ruido en el sentido clásico de la palabra. El ruido emergente, si bien también provoca perturbación sobre la señal, ha sido separado porque es causa de una distorsión de la topología del espacio de soluciones que los algoritmos tienen que recorrer. Para los algoritmos evolutivos estas distorsiones pueden no suponer un problema insalvable. En el caso de *MODS*, dado su sustrato topológico, puede hacer inviable su aplicación en determinados casos.

Los problemas derivados del ruido que se muestran son en buena parte *salvables*, pero que de no tenerse en cuenta pueden comprometer seriamente el resultado de la experimentación.

### 5.1.1. Ruido intrínseco

Cómo ya refirió en la sección 3.2 el sistema laser posee fluctuaciones de energía pulso a pulso y a medio y largo plazo. Estas son principalmente debidas los procesos involucrados en la generación de los pulsos láser, oscilaciones en la potencia de bombeo, fluctuaciones de temperatura, fluctuaciones de indice de refracción, etc.

Estas fluctuaciones son inevitables. Para observarlas hemos utilizado el dispositivo mostrado en la Figura 5.1. Para monitorizar la energía de los pulsos utilizamos un fotodiodo PIN de silicio DET110 (*Thorlabs*), con un tiempo de subida de 20ns. Su comportamiento es lineal con la energía y presenta una banda de respuesta de 350 nm a 1100 nm. Para la monitorización de la duración temporal del pulso un fotodiodo de absorción a dos fotones<sup>58</sup> (TPA) G1115 (*Hamamatsu*). La respuesta en frecuencia de este último se muestra en la Figura 5.17, donde podemos ver cómo no posee sensibilidad en la longitud de onda de irradiación. Su señal dependerá de la absorción de dos fotones en la banda de 400 nm. Antes de alcanzar los fotodiódos el haz se comprime espacialmente utilizando un telescopio (2 : 1) para mejorar la señal de TPA, ya que se trabaja sin enfocar sobre el detector. Cómo control de energía utilizamos filtros metálicos y un control variable compuesto por una lámina retardadora  $\lambda/2$  y un cubo polarizador. El pulso se reparte entre los fotodiódos con un divisor de haz 97\3.

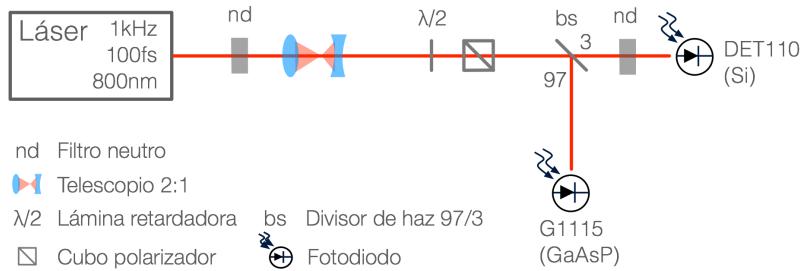


Figura 5.1: Dispositivo experimental utilizado para determinar las fluctuaciones asociadas a las oscilaciones naturales del láser en energía y duración de pulso. Utilizamos un fotodiodo lineal de *Si* y un fotodiodo de absorción de dos fotones de *GaAsP*

La señal de los fotodiódos se ha registrado durante una hora mediante un osciloscopio (*Yokogawa DL9140L*), adquiriendo una medida por segundo. La medición obtenida se muestra en la Figura 5.2. En la misma vemos la señal de TPA (rojo) y la señal lineal (negro). La señal está registrada sin promedios en el osciloscopio, a excepción de la zona señalada en la que se ha aplicado un promedio de 32 muestras. Se observan las oscilaciones a corto (variación instantánea de la señal), medio (con un periodo de unos 500 segundos) y largo plazo (la señal va decayendo con el tiempo). En la señal de TPA la amplitud de las oscilaciones se amplifica debido a su carácter no-lineal. Tenemos en ella una variación, respecto a su máximo superior al 20 % debido al proceso de respuesta cuadrática implicado<sup>59</sup>.

<sup>58</sup>La absorción a dos fotones se vera con detalle en el Capítulo 5.3.3, página 122, es un proceso no-lineal de tercer orden, cuya eficiencia depende de la densidad temporal y espacial de los fotones

<sup>59</sup>La calibración de la respuesta no-lineal se encuentra en la página 109, Figura 5.17

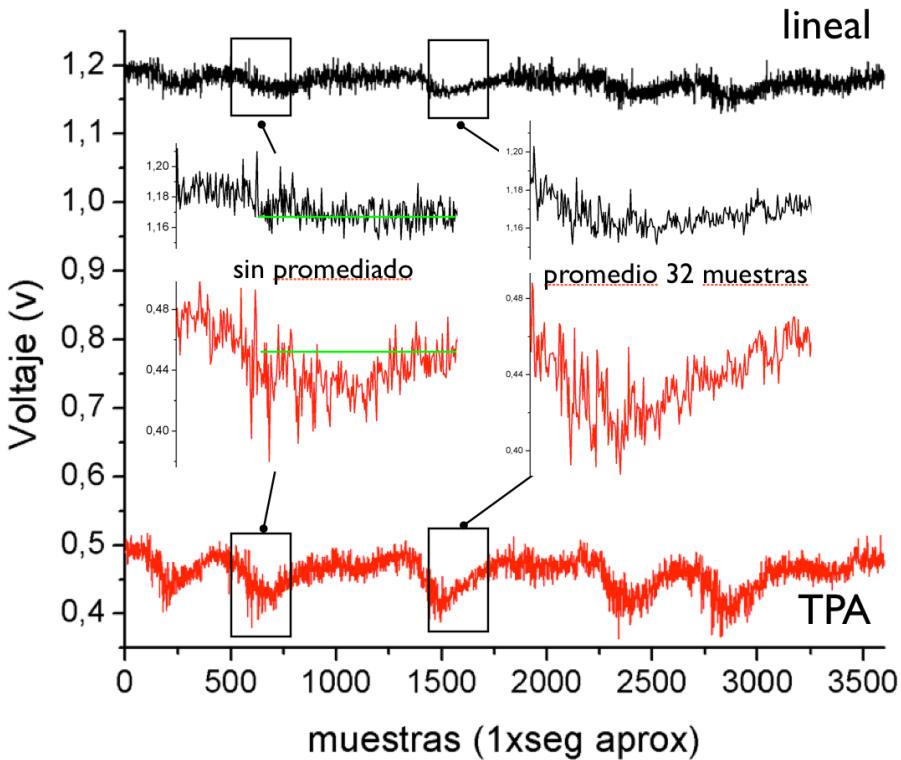


Figura 5.2: Registro de señal del fotodiodo de absorción a dos fotones y de fotodiódos lineal durante una hora, una muestra por segundo. Se aprecian variaciones en la señal *TPA* no existentes en la señal lineal, debidas a fluctuaciones temporales del pulso

En la figura hemos incluido líneas de guía para poder apreciar el detalle de la señal sin promedios (línea verde). Podemos ver que, si bien la señal lineal se mantiene estable en el medio plazo (con fluctuaciones media a medida) la señal de *TPA* presenta desviaciones no correlacionadas con la señal lineal: hay un descenso significativo en la zona central y se aprecian *spikes* que no tienen relación con la señal lineal. Estamos viendo las oscilaciones temporales del pulso láser. En la zona promediada este efecto es menos acusado, pero sigue presente.

En el interior del amplificador, el pulso es sometido a una expansión y a una posterior recompresión temporal. En estas dos operaciones las frecuencias que componen el pulso viajan espacialmente separadas. El problema surge de las corrientes térmicas de convección existentes en el interior de la caja del amplificador, debidas al calor producido en las células de pockels y en el cristal de Ti:zafiro donde se absorbe el bombeo. Estas fluctuaciones se traducen en cambios locales aleatorios del índice de refracción del medio por el que las componentes espectrales están viajando. Cada una de ellas experimenta un índice de refracción ligeramente diferente, modificando

su fase relativa. Se está produciendo una conformación temporal del pulso no controlada<sup>60</sup>. Dejamos de estar trabajando con un pulso estrictamente por transformada, obteniéndose un pulso mas ancho de lo deseado. Ello se traduce en un descenso de la señal de *TPA*.

Si observamos el histograma de ambas señales (fig. 5.3), vemos cómo el asociado a la señal de *TPA* se extiende hacia la izquierda (menos eficiencia del proceso), debido a estas expansiones temporales fortuitas del pulso, que no afectan a su energía total.

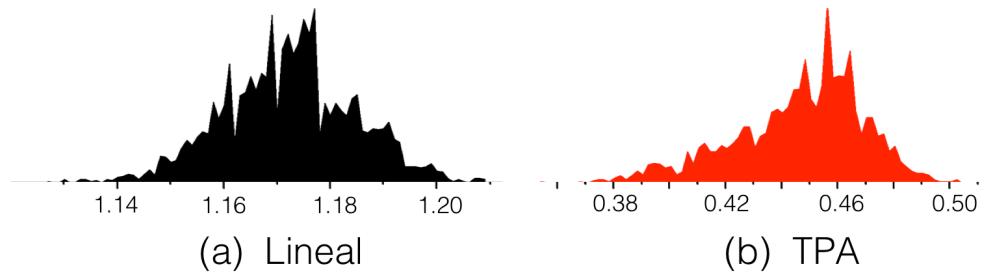


Figura 5.3: Histograma de las señales lineal (a) y de TPA (b). El histograma de *TPA* muestra cierta tendencia hacia valores inferiores, indicando la expansión temporal de los pulsos por fluctuaciones de índice del aire en el interior del amplificador

Para poder observar el comportamiento pulso a pulso utilizamos un Boxcar (*SR250 Gated Integrator, Stanford Research Systems*) para registrar la señal del fotodiodo de *TPA*. El Boxcar nos permite la adquisición de señales rápidas y repetitivas. En él disponemos de una puerta temporal de medida que se posiciona sobre la señal del fotodiodo de *TPA*. Un integrador de puerta amplifica e integra la señal presente durante el tiempo de puerta y nos proporciona el valor de esta integral en forma de una señal de voltaje. Hemos utilizado una puerta de 5 ns sincronizándola con los pulsos láser mediante la señal de disparo de la célula de pockels que extrae el pulso del Ti:Zafiro. De esta forma obtenemos el registro de todos los pulsos procedentes del amplificador funcionando con una frecuencia de pulso de 1 kHz, el resultado se muestra en la figura 5.4. Para comprobar la repetibilidad y detección de las medidas utilizamos una fase compuesta por 25 nodos y modificamos el valor del nodo central entre dos valores de fase diferente alternativamente. La señal *a* corresponde a una alternancia del nodo central entre 0 y 3 rad, la señal *b* entre 0 y 5 rad. La señal, en negro, incluida como referencia y obtenida de la electrónica del propio SLM, marca en el flanco de subida el momento en el que se manda la consigna de voltaje al SLM para el posicionamiento de fase. El flanco de bajada esta posicionado a  $\approx 200$  ms. La señal

<sup>60</sup>Este efecto también se produce en el sintetizador de pulsos, principalmente debido a las corrientes que genera el sistema de aire acondicionado, pero se han podido amortiguar mediante un sistema de apantallamiento.

roja nos muestra la lectura de *TPA*. Podemos apreciar el transitorio de alineación de las moléculas de cristal líquido del *SLM*, este proceso de alineación tiene una duración de entre 200 y 250 ms<sup>61</sup>. La fase de 0 rad implica la aplicación de un mayor voltaje, debido a esto vemos cómo la alineación es mas rápida.

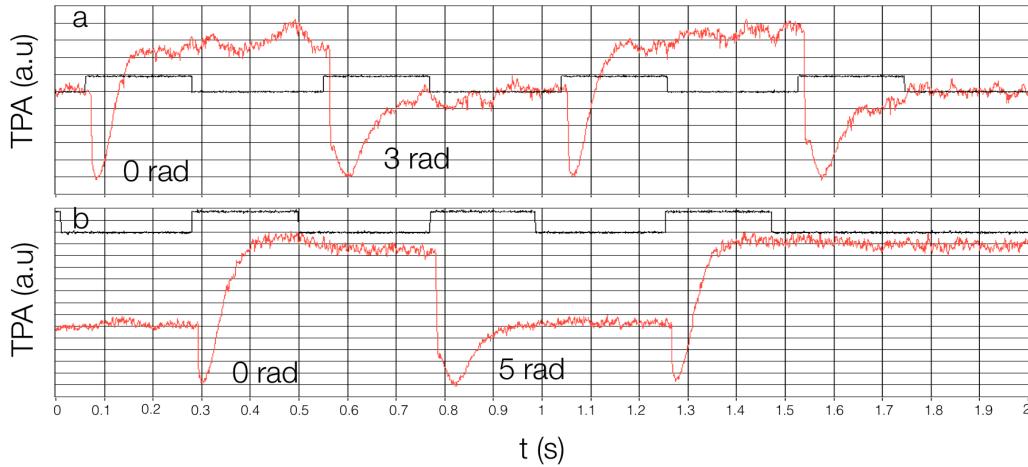


Figura 5.4: Registro pulso a pulso, mediante la utilización de un boxcar, de la señal del fotodiodo *TPA* ante cambios repetitivos de fase. Se aprecia el transitorio de alineación del cristal líquido en el *SLM* y el ruido existente en la señal.

Despues de poner todos los píxeles a 0 rad, la señal de *TPA* aumenta. La imposición de una fase plana no implica estructuración temporal y el pulso es el mas corto posible. Al cambiar el nodo la fase estructura el pulso y el proceso de absorción de dos fotones es menos eficiente. Las oscilaciones siguen estando presentes en la observación pulso a pulso, distinguimos dos tipos de oscilaciones de señal:

- *Oscilaciones pulso a pulso.* Entendemos que estas son inherentes al funcionamiento del sistema de amplificación, son oscilaciones de potencia y/o temporales.
- *Oscilaciones a medio plazo (> 20 ms).* Estas son debidas a fluctuaciones en la densidad del aire y vibraciones mecánicas de baja frecuencia (Tránsito de personas, apertura de puertas, aire acondicionado,...). Estas provocan fluctuaciones que se traducen en variaciones de duración del pulso incontroladas y erráticas.

Respecto a las primeras poco podemos hacer, existe una propuesta que podemos ver en [42], donde se separan mediante una pantalla en el interior del amplificador

<sup>61</sup>Dato del fabricante

las áreas de expansión-compresión de pulso de la de amplificación. De esta forma las corrientes convectivas no afectarían al expansor-compresor. El segundo tipo de oscilaciones se ha logrado mejorar significativamente. Descubrimos que un elemento crítico era la posición del *SSA*<sup>62</sup> frente a la salida del amplificador. De alguna forma el *SSA* amplificaba las variaciones de presión del aire. La ubicación del *SSA* en otro lugar contribuyó a una mejora sustancial. Aun así, la obligación de utilizar aparatos de aire acondicionado para mantener la temperatura del laboratorio constante hace que existan corrientes de aire que siguen afectando al sistema de forma errática. Las dos señales mostradas (a,b) han sido registradas sin el *SSA* a la salida del amplificador. Están tomadas el mismo día con una separación temporal no mayor de una hora, y sin hacer modificaciones en el sistema experimental. A pesar de ello se aprecia una diferencia significativa en las oscilaciones de la señal. No hemos logrado identificar claramente el agente causante de estas oscilaciones temporales mas allá de las corrientes de convección.

### 5.1.2. Ruidos emergentes. Efectos no deseados de la manipulación de fase

Una de las características esperadas del sintetizador de pulsos mediante manipulación de fase es la conservación de la energía entre el pulso de entrada y el de salida. En la práctica, existe en el sistema una modulación de la amplitud del espectro asociada con los cambios de fase que introducimos a través del SLM, que hace que esto no se cumpla. Esta modulación se produce tanto en el propio sintetizador como a lo largo del camino que recorre el pulso antes de llegar al experimento. La causa principal de dicha modulación son las componentes de polarización de los pulsos. Tanto las redes de difracción de entrada y salida del sintetizador como el SLM deben trabajar con polarización horizontal. La existencia de componentes verticales de polarización hace que la eficiencia de las redes descienda y que en el SLM las componentes espestrales sufran una rotación de polarización<sup>63</sup>, dependiente de la fase impresa en cada pixel. Diferentes partes del espectro experimentan una diferente rotación de polarización debida a los diferentes cambios de fase inducidos que, en la red de difracción de salida, se verán difractadas con diferente eficiencia. Por otro lado, para poder trabajar con la máxima energía posible el haz que incide sobre las redes no se encuentra comprimido, teniendo una extensión de unos 8 mm de diámetro<sup>64</sup>. Este hecho hace que se genere difracción *off-axis* restando eficiencia al proceso de difracción.

---

<sup>62</sup>SSA, *Single Shot Autocorrelator, Positiva Light Inc.*

<sup>63</sup>Cuando la polarización del pulso incidente sobre el SLM es horizontal sólo se ve afectado por el índice extraordinario, modificando solamente su fase, conservándose la orientación de la polarización a la salida del cristal líquido

<sup>64</sup> $1/e^2$

El pulso emergente del sintetizador, en la práctica, puede poseer diferentes componentes de polarización vertical en diferentes sectores del espectro, dependientes de la fase aplicada. Si bien la componente vertical para una determinada componente espectral será porcentual, al atravesar componentes que discriminan polarización (atenuadores con lámina  $\lambda/2$  más cubo polarizador, ciertos recubrimientos...). Cada una de las componentes espectrales se verá afectada de forma ligeramente diferente. Esto conlleva una modulación selectiva de la intensidad espectral, que lleva aparejada una estructuración temporal.

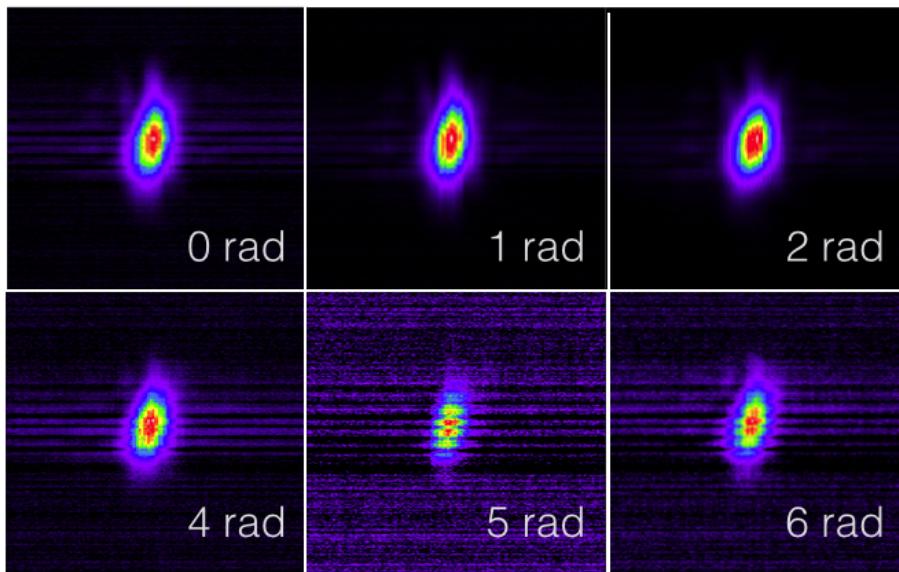


Figura 5.5: Trazas de *FROG* que muestran la modulación de amplitud consecuencia de la aplicación de fases planas de diferentes valores. Es especialmente notable para una fase de 5 radianes.

Por lo tanto, al realizar la una evaluación del efecto a optimizar al imponer una fase, estaremos observando no solo cómo afecta la fase a la interacción laser-materia, también cómo afecta el sistema experimental al pulso: tenemos una distorsión del espacio de soluciones, se ha contaminado. Esto podrá afectar a la eficiencia de los algoritmos, especialmente de *MODS*, basado en la existencia de las características topológicas de la interacción expuestas en el capítulo 4.5.1, página 69. La modulación indicada es fuertemente dependiente de la alineación del sistema, configuración del sintetizador y estabilidad del láser. Incluso puede presentar un comportamiento variable a lo largo de los días.

Para mostrar el efecto de la modificación de energía espectral debida a los cambios de fase en el siguiente ejemplo hemos puesto a prueba una de las invarianzas de las que hablábamos en el capítulo 4.2.7. En concreto analizamos si el pulso conserva su

energía ante fase constante de diferentes valores. Imprimimos sobre el *SLM* diversas fases planas con diferentes valores (0,1,2,4,5 y 6 radianes), y observamos sus trazas de *FROG*. El resultado se muestra en la Figura 5.5 donde podemos ver el evidente efecto de amplitud sobre el pulso. La energía del pulso se esparce sobre de la ventana temporal de forma especialmente notable en el caso de fases situadas en el tercer y cuarto cuadrante de fases (modificaciones de fase superiores a  $\pi$  radianes). Al examinar la figura debemos tener en mente que las trazas de *FROG* son autoescaladas y el contraste de color nos indica la diferencia de energía espectral a lo largo del tiempo. También se observa cierta modificación temporal, el pulso con fase de 2 rad es ligeramente mas ancho que los demás.

La consecuencia, como hemos señalado, es que la señal observada por los algoritmos tendrá dos dependencias, una asociada a la modulación de amplitud provocada por la fase impuesta y la otra del efecto en sí que estemos observando. Debido a ello hay que ser especialmente cuidadosos con los elementos por los que viaja el pulso a lo largo del sistema experimental, fundamentalmente filtros de polarización no controlados.

La optimización marginal, es decir, la observación del efecto temporal que existe a partir de la variación de un solo nodo de los que conforman la fase, es el núcleo del procedimiento de búsqueda de *MODS*. En la Figura 5.6 se muestra un ejemplo del tipo de efecto espectral pernicioso que podemos llegar a encontrar. Utilizamos una fase plana con valor 0 rad compuesta por 50 nodos y situamos el nodo 25 a 5 radianes. El espectro se mide a través del setup PG-FROG mediante su espectrómetro (Figura 3.13), pag 45. Cada nodo controla la energía correspondiente a 12 píxeles, se aprecia claramente el efecto localizado de esta cambio local de fase, causando una pérdida de energía espectral.

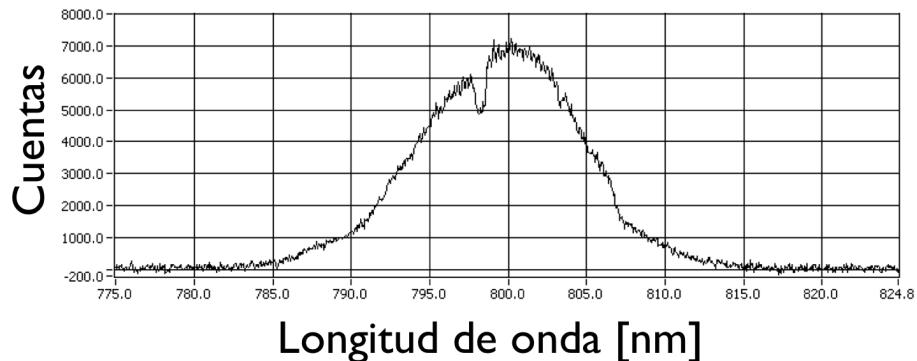


Figura 5.6: Efecto de la modulación de amplitud en el espectro del pulso. Se utilizan una fase compuesta por 50 nodos posicionados a 0 rad excepto el nodo 25 que se sitúa a 5 rad. Se aprecian cambios en la energía espectral asociada al cambio de fase.

Un ultimo ejemplo, en el que es especialmente notable cómo la estructuración de la fase puede afectar de forma catastrófica al pulso lo encontramos en la Figura 5.7. En la misma vemos dos fases compuestas por 50 nodos con valores de fase aleatorios. En la primera de ellas los valores han sido seleccionados dentro del rango  $[0, \pi]$ , de forma que no se produce el enrollado de la fase. En la segunda el rango se ha ampliado a  $[0, 3/2\pi]$ , forzando de esta forma el enrollado de la fase.

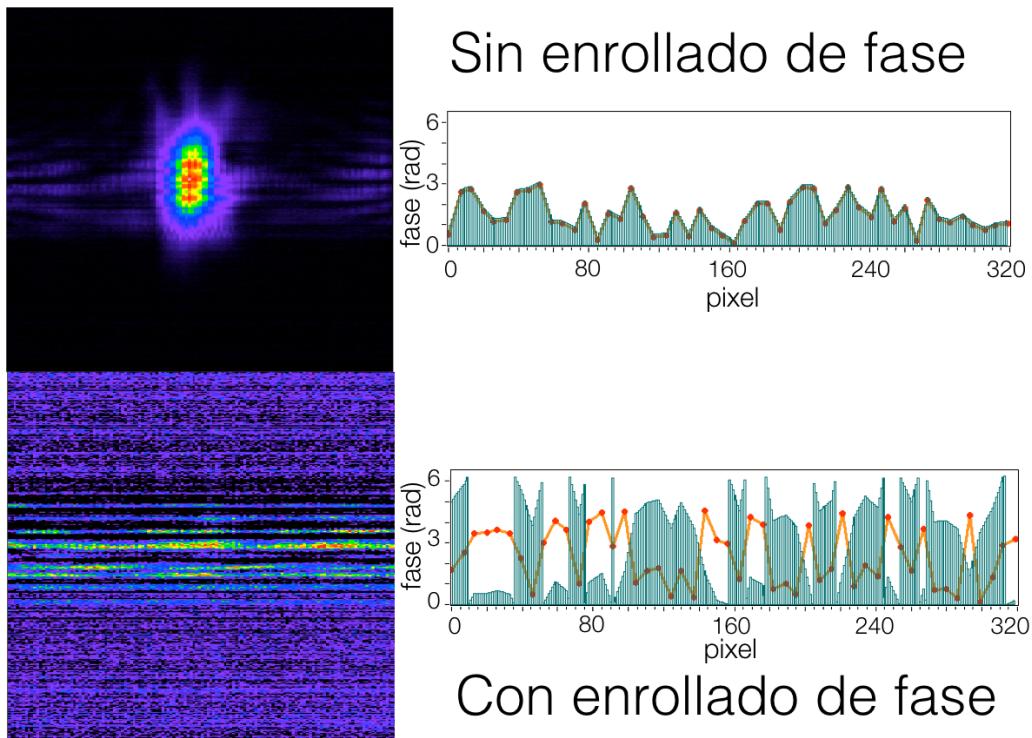


Figura 5.7: Efecto de una fase aleatoria con y sin enrollado de fases. Los saltos bruscos de fase generan pérdidas de energía espectral y distorsión temporal del pulso.

La interpolación lineal entre los valores de los nodos (puntos rojos) se muestra como una línea amarilla. La interpolación real aplicada se muestra con barras verdes. Esta representación mediante barras ha sido elegida por representar mejor lo que ocurre realmente en el SLM, donde sólo podemos sumar fase, en forma de variación de camino óptico. Una vez se ha producido el enrollado de la fase, la distorsión en nuestro pulso provoca que su energía se distribuya a lo largo de todo el tiempo, nos estando este efecto directamente relacionada con la fase aplicada sino, cómo hemos visto anteriormente, con los efectos no deseados de atenuación espectral selectiva. También nos afecta el efecto de atenuación que se produce al tener un alto contraste de fase entre dos píxeles adyacentes [15].

### 5.1.3. Conclusiones

Tanto las fuentes de ruido intrínsecas como las emergentes afectan negativamente al desarrollo de los algoritmos utilizados. Los ruidos intrínsecos (oscilaciones de potencia y temporales del pulso láser) limitan la precisión con la que podemos realizar nuestros ajustes de fase y, por lo tanto, el resultado que podemos llegar a obtener.

Por otro lado las oscilaciones de energía a medio plazo nos van a limitar el tamaño de las poblaciones en los algoritmos evolutivos. Si la población es muy grande, nuestra linea base de comparación entre los individuos variaría dentro de cada generación, falseando su comparación. Por ello, y también con el objetivo de minimizar la ventana de recursos consumidos, el tamaño de población se ha establecido en 10 individuos tanto para *DE* como para el *AG*. En el caso de *MODS* cada nodo utiliza su propia referencia, con lo que su ventana temporal de comparación será de  $2+S^{65}$ , utilizamos típicamente valores de  $S=2$  o  $S=3$ , ligeramente inferior al número de evaluaciones en una generación en los evolutivos.

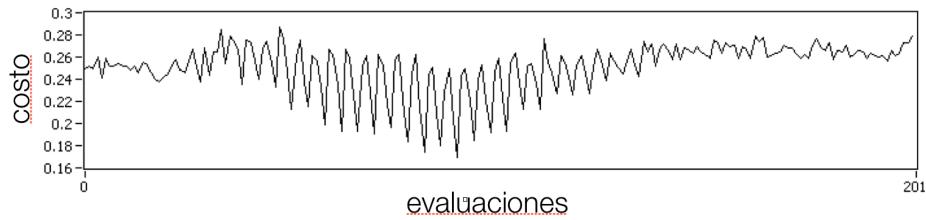


Figura 5.8: Feedback de *MODS* durante un barrido y optimización de mérito. La modulación de amplitud hace que cualquier cambio introducido en la fase empeore la señal. Se puede apreciar el contorno espectral.

La distorsiones emergentes debidas a la modulación de pulso tienen un efecto directo sobre el espacio de soluciones que observamos. Para los algoritmos evolutivos esto no debe suponer un problema, ya que ellos no hacen ninguna asunción acerca del espacio. Este efecto, sin embargo, socava las bases de *MODS*. Los efectos de la modulación de amplitud no deseada en el proceso de optimización llevado a cabo en *MODS* se ejemplifican claramente en la Figura 5.8, obtenida bajo condiciones de fuerte modulación de amplitud (sistema experimental no optimizado). El registro corresponde a un intento de maximización la señal de *TPA*. Se muestran todas las evaluaciones realizadas por *MODS* durante un barrido de optimización. A medida que recorremos los nodos cualquiera de las fases de prueba aplicadas suponen una perdida de energía debida a la modulación de amplitud. Incluso podemos ver que la amplitud de este ruido sigue al espectro. Estamos intentando optimizar las fases, pero la modulación temporal introducida es indistinguible de la modulación de amplitud

<sup>65</sup>Tres muestras en la evaluación inicial mas una muestra por salto de refinamiento

espectral. Se conforma un espacio de soluciones en el que el efecto relacionado con el pulso está contaminado.

A pesar de lo comentado anteriormente es posible minimizar el impacto de estos efectos mediante alineación y puesta a punto del amplificador, la alineación cuidadosa del sintetizador, la eliminación de los elementos que introducen discriminación por polarización en el experimento y la utilización de medidas promediadas del observable para mejorar la señal detectada.

Gracias a ello se alcanzan en la mayor parte de las situaciones condiciones en las que *MODS* funciona con excelentes resultados.

## 5.2. Generación de formas de onda arbitrarias

La aplicación de las técnicas de conformación temporal de pulsos ultracortos en la optimización de procesos de interacción no-lineal está directamente relacionada con la capacidad del sistema de generar formas de onda arbitraria, entendiendo por forma de onda arbitraria cualquier tipo de forma de onda ,  $|E(t)|$ , que presente una distribución temporal de la energía diferente de la original. La capacidad de generación de formas de onda en el sistema esta restringida por las limitaciones intrínsecas de nuestro sistema de conformación (número de pixeles, resolución en el cambio de fase, relación entre espacio entre pixeles/ancho de pixel,...), el ancho de banda disponible en el pulso láser, el sistema de control de la fase y por el hecho de estar utilizando modulación de fase (sin modulación de amplitud). En el capítulo 4.2 vimos cómo para intentar dotar de la máxima flexibilidad al sistema de control hemos optado por la utilización de nodos de control sobre la fase. En esta sección evaluaremos la capacidad de *DE* y *MODS* en la conformación de formas de onda arbitrarias.

La tarea es encontrar la fase necesaria para conformar el pulso gausiano de entrada en un pulso de salida con una estructuración temporal arbitraria  $|E_{target}(t)|$ . El pulso de salida del sintetizador es  $\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{E}_{in}(\omega)H(\omega)$ , siendo  $H(\omega)$  la función de transferencia del sistema sujeta a la restricción de conservación de la energía impuesta por la utilización de modulación de fase,  $|H(\omega)| = 1$ . Esta restricción implica que no existe una solución exacta en el caso general, por lo que tendremos una aproximación a nuestro objetivo,  $|E_{out}(t)| \approx |E_{target}(t)|$ . Para obtener la fase necesaria se pueden aplicar algoritmos de búsqueda, como algoritmos genéticos [77] o simulated annealing [78]. Entre los algoritmos utilizados destaca la adaptación del algoritmo iterativo de Gerchberg-Saxton (*GS*) [17], que ofrece soluciones con un alto grado de ajuste y una elevada velocidad de convergencia, siendo el mas usado. El resultado de *GS* para lograr  $|E_{target}(t)|$  será nuestro patrón de comparación.

Así que evaluamos el comportamiento *DE* y *MODS* a la hora de generar pulsos arbitrarios, así como su comportamiento frente a diversos parámetros como el número de nodos de conformación de fase o, en el caso de *MODS*, el punto inicial de búsqueda.

### 5.2.1. Descripción experimental

Para resolver el problema de recuperación de la fase de forma objetiva utilizaremos una adaptación del algoritmo de Gerchberg-Saxton [17] para obtener la aproximación patrón a  $|E_{target}(t)|$  que utilizaremos en la evaluación de *MODS* y *DE*.

Veamos primero cómo funciona *GS*. En el dominio tiempo-frecuencia *GS* es capaz de sintetizar la fase espectral, que codifica una forma temporal  $|E(t)|$ , proporcionando una buena aproximación a la forma de pulso objetivo,  $|E_{target}(t)|$ . Todo ello sujeto a la restricción derivada de la conservación de la energía espectral entre el pulso de

entrada y el de salida. El Algoritmo 4 nos muestra los pasos que ejecuta *GS* para hacer la reconstrucción de la fase.

---

**Algoritmo 4** Algoritmo de Gerchberg-Saxton
 

---

```

1: repeat
2:    $E_k(t) = |E_k(t)| e^{i\phi_k(t)} = FFT^{-1} \{ \tilde{E}_k(\omega) \}$             $\triangleright$  fase inicial random
3:    $E'_k(t) = |E_{target}(t)| e^{i\phi_k(t)}$ 
4:    $\tilde{E}'_k(\omega) = |\tilde{E}'_k(\omega)| e^{i\phi'_k(\omega)} = FFT \{ E'_k(t) \}$ 
5:    $\tilde{E}_{k+1}(\omega) = |\tilde{E}'_{meas}(\omega)| e^{i\phi_{k+1}(\omega)}, \phi_{k+1}(\omega) = \phi'_k(\omega)$ 
6: until  $|E_k(t)|$  satisfaga la condición de salida
  
```

---

GS hace uso en los espacios conjugados de tiempo-frecuencia, de forma iterativa, de las dos restricciones invariantes que existen en el problema: el pulso objetivo  $|E_{target}(t)|$  y el espectro disponible,  $|E(\omega)|$ . El proceso comienza con una transformada rápida de Fourier<sup>66</sup> inversa  $FFT^{-1}$  del pulso en frecuencia suponiéndole una fase arbitraria, en nuestro caso como módulo espectral utilizamos una envolvente gaussiana sintética. Se obtiene  $E_k(t)$  y su módulo es sustituido por el pulso objetivo para crear  $E'_k(t)$ , sobre el que aplicamos una  $FFT$  para volver al dominio de la frecuencia y sustituimos la amplitud espectral resultante,  $|\tilde{E}'_k(\omega)|$  por  $|\tilde{E}'_{meas}(\omega)|$ , reteniendo la fase obtenida. El proceso se repite hasta que  $E_k(t)$  satisface la condición de detención, en nuestro caso ha sido la estabilización de la convergencia.

Vemos cómo teniendo una caracterización espectral de nuestro pulso podemos obtener la fase necesaria para generar un  $|E_{target}(t)|$ . ¿Por qué no se usa esta aproximación en el bucle de optimización experimental?. La respuesta es que  $|E_{target}(t)|$  es, precisamente, nuestra incógnita. En la optimización experimental observamos la interacción del pulso, no el pulso en sí. Si hubiéramos escogido realizar la búsqueda en el dominio del tiempo, en el que los algoritmos generaran un  $E_{trial}(t)$  en vez de  $\phi_{trial}(\omega)$ , habríamos necesitado utilizar *GS* para obtener la fase a imprimir.

El bucle de optimización en el que los algoritmos van a testarse se muestra en la Figura 5.9. Las fases de prueba generadas por los algoritmos,  $\phi_{trial}$ , son añadidas a un espectro gaussiano sintético,  $|A(\omega)|$ , obteniendo su representación temporal mediante una  $FFT^{-1}$ . Se utiliza el mismo espectro gaussiano que el utilizado por GS para obtener el patrón de comparación.

$$E_{trial}(t) = FFT^{-1} \{ |A(\omega)| e^{i\phi_{trial}(\omega)} \} \quad (5.1)$$

---

<sup>66</sup>Fast Fourier Transform

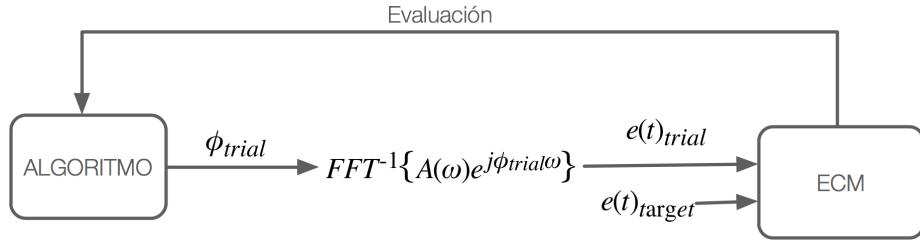


Figura 5.9: Esquema del bucle de optimización utilizado para testar los algoritmos. La fase generada por el algoritmo es añadida a un espectro sintético. Se aplica entonces un observador, en este caso el *ECM* de la forma temporal generada y la objetivo, que nos devuelve la señal de evaluación.

La realimentación se obtiene realizando una comparación entre  $|E_{trial}(t)|$  y  $|E_{target}(t)|$  mediante su error cuadrático medio (*ECM*), realizamos una optimización de costo.

$$\text{costo} = \frac{1}{N} \sum_{n=0}^N ||E_{target}(t) - |E_{trial}(t)||^2 \quad (5.2)$$

Ademas de estimar la capacidad de *MODS* y *DE* en la generación de formas de onda arbitrarias hemos hecho una exploración de la configuración de los parámetros *F* y *C* para *DE* en vistas a su utilización en el plano experimental. Tambien se ha realizado una evaluación del comportamiento de *MODS* frente al punto de partida.

### 5.2.2. Resultados experimentales

La forma de onda elegida, así como el resultado ofrecido por *GS* en su ajuste se muestran en la Figura 5.10. El objetivo es un doble pulso asimétrico con una separación temporal de  $\approx 4\text{ps}$ . como se aprecia *GS* no realiza un ajuste exacto de la forma y presenta pulsos satélite de diferentes amplitudes y duraciones.

Se realizan conformaciones mediante *MODS* y *DE*, utilizando fases compuestas por 50 y 200 nodos, realizando optimización de costo. El numero de nodos utilizados tiene dos efectos contrapuestos. En principio, al descender el número de nodos la velocidad de convergencia aumenta, pero el ajuste resulta menos exacto, y viceversa, a mayor numero de nodos se puede conseguir una fase mas precisa, pero a costa de un incremento del tiempo de convergencia. Se presenta a continuación una evaluación del comportamiento general. En todos los casos realizaremos un análisis cualitativo de los resultados.

Sobre *DE* se ha analizado su comportamiento en función de los parámetros *F* y *C*, explorando la convergencia ante una muestra amplia de valores, explorando todas las combinaciones posibles de los valores  $F=[0.5, 0.7, 0.9]$  y  $C=[0.5, 0.7, 0.9]$ . Se utiliza

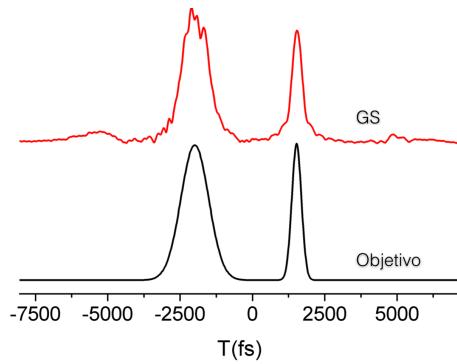


Figura 5.10: Pulso objetivo y resultado de aproximación conseguida mediante el algoritmo de Gerchberg-Saxton

una población de 10 individuos inicializada con una distribución aleatoria uniforme en el intervalo  $[0, 2\pi)$  y con una probabilidad de aplicación de mutación trigonométrica  $pt=0.05$ , la detención se ha fijado en 10000 evaluaciones. Cada una de las combinaciones de parámetros se han evaluado durante 10 lanzamientos, presentándose el resultado promedio de los lanzamientos.

Las curvas promedio obtenidas se muestran en la Figura 5.11, donde se ha añadido el resultado de costo obtenido por *GS*, representado por la línea naranja horizontal. Con el fin de facilitar la interpretación de las curvas obtenidas hemos realizado *mapas de costo* donde se refleja el valor final de costo, representado mediante una tabla de colores, en función de ambos parámetros  $F$  y  $C$ .

Utilizando 50 nodos los resultados alcanzados son de inferior calidad a los obtenidos al utilizar 200. Esto es debido a que 50 nodos no son suficientes para poder conformar la fase de forma suficientemente precisa. La utilización de 200 nodos sí es suficiente, como veremos en los resultados de *MODS*, pero el tiempo de optimización requerido por *DE* para lograr la convergencia es superior a las 10000 evaluaciones que se han puesto como condición de detención. Se observa cómo hay curvas que aún no han convergido y que es posible que llegaran a alcanzar el resultado de costo obtenido por *GS*. Los peores resultados corresponden a valores altos, tanto de  $C$  como de  $F$ . También observamos una mayor dispersión en las soluciones al utilizar 200 nodos, asociada al mayor espacio de búsqueda implicado.

La superficie del mapa de soluciones es interpolada a partir de los datos correspondientes a las coordenadas de  $F$  y  $C$  (marcadas mediante puntos). En el caso de la utilización de 50 nodos el comportamiento mejor al aumentar los valores de  $F$  y  $C$ , es decir, el rango de búsqueda es mayor<sup>67</sup>. Nos está indicando que el esfuerzo de

<sup>67</sup>El parámetro  $F$  modula la amplitud de las mutaciones introducidas y  $C$  la variabilidad que existe en la población mutada

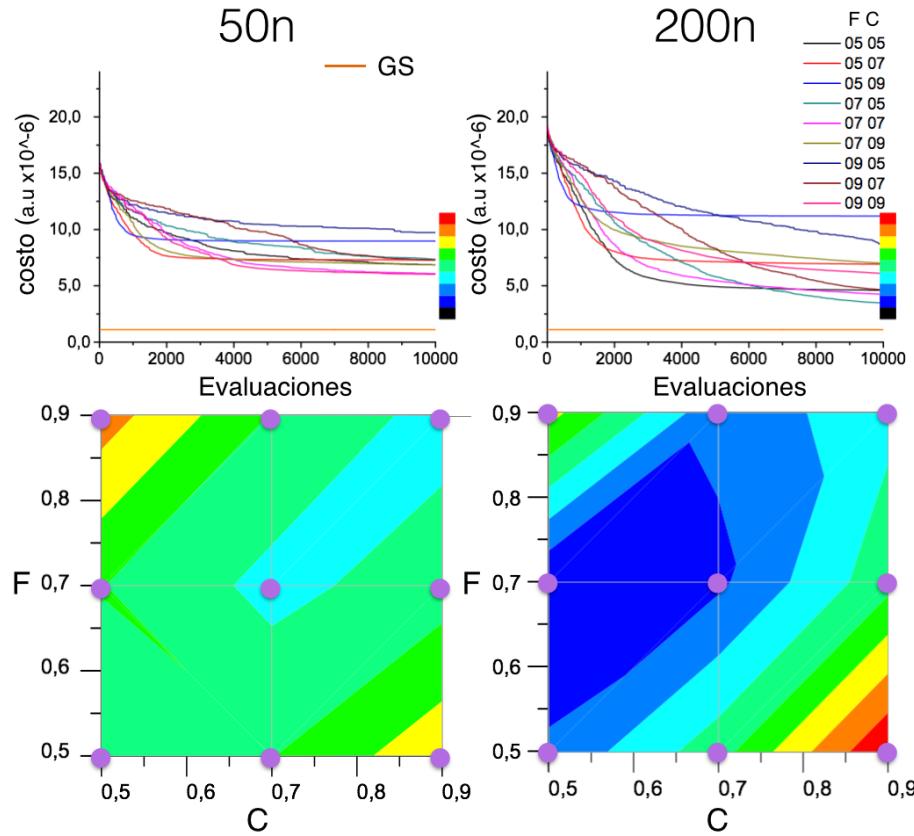


Figura 5.11: Curvas de convergencia de *DE* en la optimización frente a los parámetros *F* y *C*, para 50 y 200 nodos. Mapas interpolados de bondad de la solución obtenida en función de los parámetros evaluados. La linea naranja indica el resultado alcanzado por *GS*

búsqueda es mayor. Al incrementar el número de nodos la situación se invierte. Ahora tanto *F* como *C* presentan valores bajos para lograr mejores ajuste. Las soluciones son mas accesibles. La combinación  $F=0.7$ ,  $C=0.7$  parece un compromiso adecuado para ambos números de nodos.

En la evaluación de *MODS* pretendemos observar cómo se comporta, ademas de frente el número de nodos, ante los diferentes tipos de barridos de fase y frente a la fase inicial (punto de partida en el espacio de soluciones). Hemos analizado barrido secuencial, aleatorio y por energía. El punto de partida es evaluado partiendo de una fase plana de  $0 \text{ rad}$  y una fase aleatoria con distribución uniforme  $[0, 2\pi) \text{ rad}$ . Por cada una de las pruebas se han realizado 10 lanzamientos y se muestra el promedio en el caso de fase aleatoria de partida. Por su carácter determinista esta operación no es necesaria cuando utilizamos una fase de partida plana. La configuración elegida es

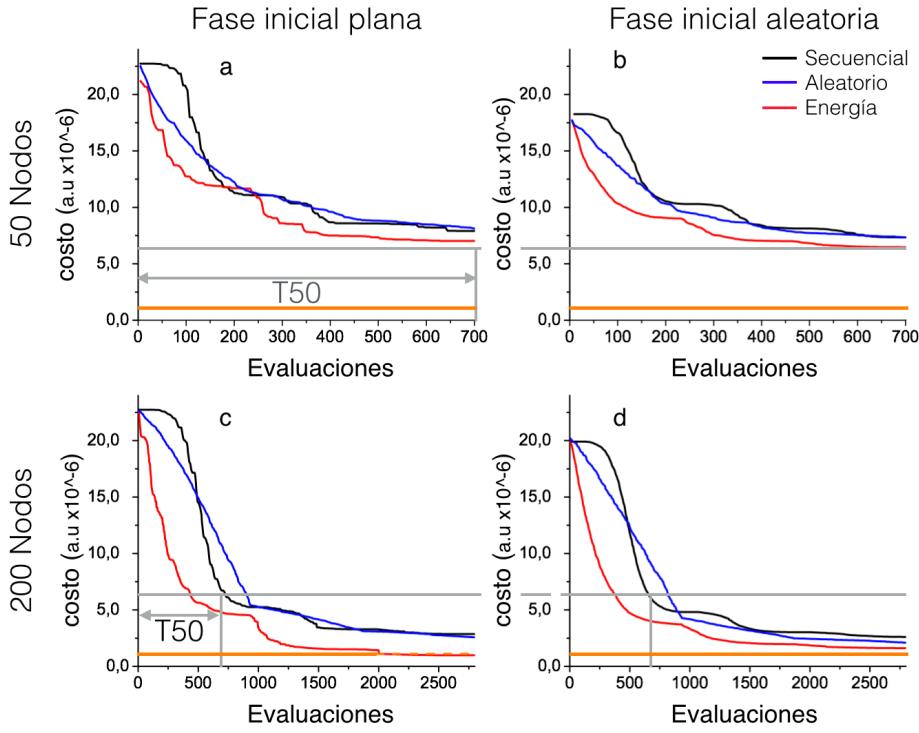


Figura 5.12: Comportamiento de *MODS* utilizando 50 y 200 nodos, partiendo de fase plana=0 rad. y aleatoria  $[0, 2\pi]$ , utilizando recorridos secuencial, aleatorio y por energía de los nodos. El recorrido por energía resulta más efectivo en todos los casos, 50 nodos son insuficientes para la conformación de fases. Se incluyen lineas visuales para la comparación de los resultados y tiempos de convergencia entre 50 y 200 nodos.

*MODS/3-2-3* , 3 barridos con 2 saltos en el primero, tres en los siguientes.

Antes de examinar los resultados globales analizaremos en el comportamiento de las curvas en función del tipo de recorrido. Para ello nos centramos en la evolución de las curvas sobre el primer barrido partiendo de fase aleatoria utilizando 200 nodos<sup>68</sup>. La evolución de estas curvas depende de la cantidad de energía asociada a la posición de cada nodo y a su orden de optimización. En el caso de recorrido secuencial (negro) la curva presenta una evolución sigmoidal, al inicio y final del barrido estamos optimizando en las colas espectrales, donde casi no hay energía y por tanto no hay optimización. Cuando optimizamos en función de la energía espectral (rojo) la mayor parte de la optimización se realiza al principio de la curva. En el caso de selección aleatoria obtenemos una linealización del proceso de convergencia.

En la Figura 5.12 vemos el resultado promedio de las optimizaciones ante los

<sup>68</sup>Una imagen ampliada la encontramos en la Figura 4.9, página 76

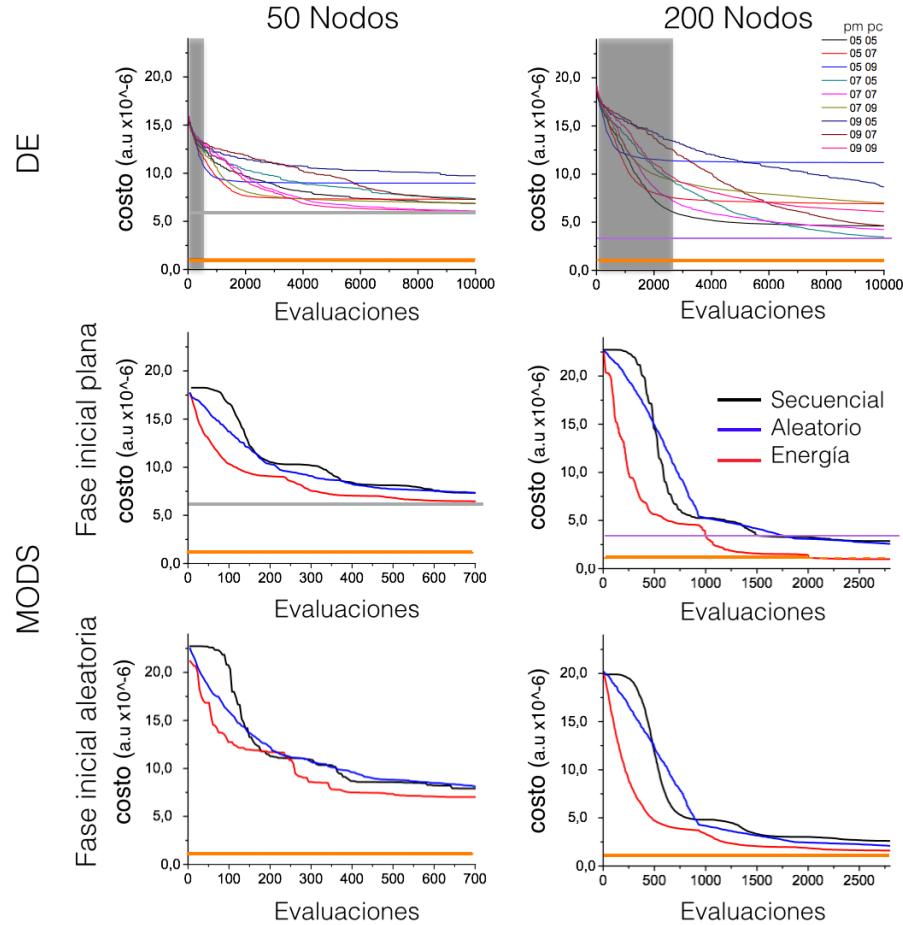


Figura 5.13: Comparación entre todos los resultados obtenidos. las evaluaciones requeridas por *MODS* para igual número de parámetros se han marcado con un rectángulo gris sobre *DE*, así como una guía visual del mejor resultado alcanzado. El resultado de *GS* coincide con el alcanzado por *MODS* utilizando 200 nodos y barrido por energía

diferentes parámetros. El valor de coste óptimo, determinado por el valor alcanzado por *GS* se representa por una linea naranja. Sobre 50 nodos *MODS/3-2-3* emplea 701 evaluaciones y 2801 para 200 nodos. En todos los casos los mejores resultados son los obtenidos en recorrido por energía, seguido por el aleatorio y el recorrido secuencial en ultimo lugar.

Al igual que sucedía en la optimización con *DE*, la modelización de la fase mediante 50 nodos no ofrece el control temporal suficiente cómo para alcanzar el resultado ofrecido por *GS*. La inicialización desde fase aleatoria logra mejorar ligeramente el valor de costo alcanzado frente a la fase plana. Sobre 200 nodos la convergencia alcanzada por el recorrido por energía partiendo de fase plana iguala al conseguido

por *GS*. Cuando inicializamos desde una fase aleatoria, el resultado del recorrido por energía empeora ligeramente y el resto de recorridos presenta una ligera mejora. Se han incluido marcas visuales (gris) que indican el mejor nivel alcanzado y tiempo de optimización requerido para 50 nodos.

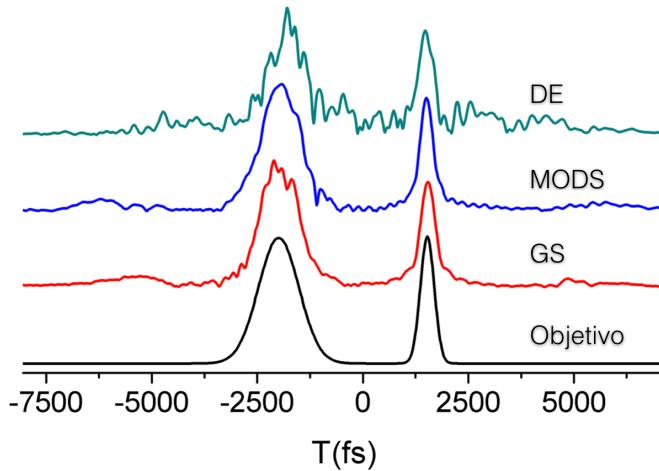


Figura 5.14: Mejores aproximaciones al objetivo temporal. *GS* y *MODS* obtienen un resultado similar, *DE* se aproxima a la solución, pero aún está lejos de poder considerarse una buena solución.

La comparación conjunta de los resultados de ambos algoritmos se muestra en la Figura 5.13. Sobre las gráficas correspondientes a *DE* se ha dibujado una zona sombreada correspondiente a las evaluaciones que requiere *MODS* ante el mismo número de nodos. Asimismo se incluyen guías visuales para poder comparar el resultado obtenido por número de nodos. En el caso de 200 nodos esta guía es el propio valor conseguido por *GS*. En el caso de la utilización de 50 nodos los resultados alcanzados por ambos algoritmos se sitúan en el mismo nivel, pero *MODS* tiene una clara ventaja al utilizar únicamente 701 una evaluaciones frente a las 10000 utilizadas por *DE*. Sobre 200 nodos *MODS* alcanza en 2801 evaluaciones un valor equivalente al proporcionado por *GS*.

Una comparativa visual de los mejores ajustes conseguidos por los algoritmos, junto con el objetivo, se muestra en la Figura 5.14, donde vemos cómo *GS* y *MODS* presentan soluciones que conforman el pulso objetivo con ligeras diferencias, recordemos que no existe una solución exacta a este problema. Esto se transforma en la existencia de múltiples mínimos locales, por lo que ambas soluciones pertenecen a alguno de esos mínimos. *DE* aún está lejos lograr una conformación adecuada, aunque no descartamos que pudiera lograrla con un número suficiente de evaluaciones.

En la Figura 5.15 se muestran dos ajustes de una forma de onda arbitraria con

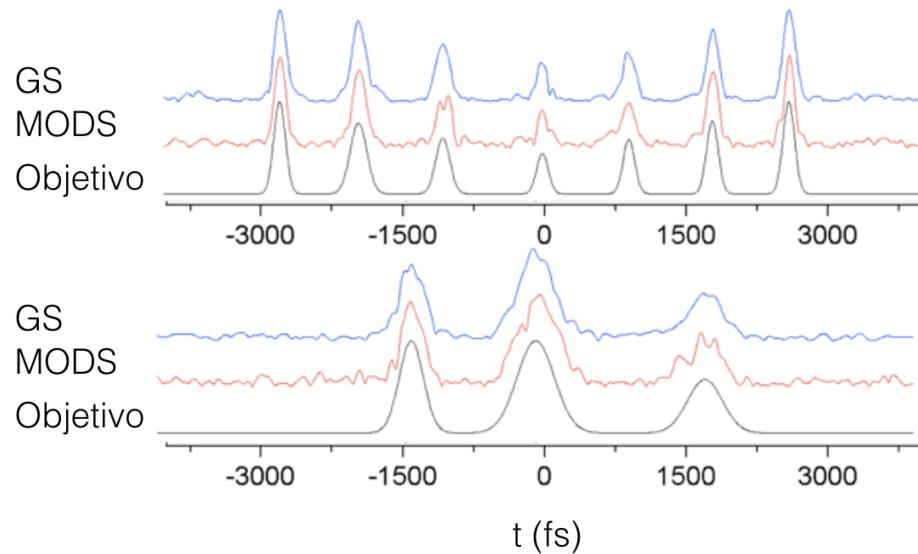


Figura 5.15: Soluciones obtenidas por *MODS/320/p/s/3-3-3* comparadas con el resultado de *GS* al generar dos formas de onda compuestas por 7 y tres pulsos. Los resultados son esencialmente iguales.

una mayor complejidad, el pulso objetivo esta conformado por un tren de siete pulsos (5.15.a) y un tren de tres pulsos (5.15.b) respectivamente. En ambos casos se ha utilizado *MODS/320/p/s/3-3-3* 320 nodos partiendo de fase plana con barrido secuencial, utilizando para el ajuste 4801 evaluaciones. El objetivo no es competir con *GS* (necesita tan solo decenas de iteraciones), sino comprobar que *MODS* posee la capacidad de recorrer el espacio de soluciones y su viabilidad de aplicación sobre la generación de pulsos arbitrarios. En ambos casos las soluciones ofrecidas por *MODS* son de una calidad comparable a las ofrecidas por *GS*

### 5.2.3. Conclusiones

Hemos comprobado la capacidad de *MODS* para poder resolver un problema de obtención de una distribución arbitraria de energía, capacidad que consideramos imprescindible para su aplicación en problemas experimentales.

*MODS* alcanza soluciones de una calidad comparable a la que ofrece el algoritmo estándar en este tipo de problemas (*GS*), utilizando un número de evaluaciones muy reducido en el proceso.

En comparación DE, una estrategia evolutiva, tiene un comportamiento solo discreto si observamos las soluciones finales. Hay que tener en cuenta que estamos restringiendo un poco sus condiciones de trabajo. El número de variables a optimizar es

muy elevado y estamos utilizando una población ciertamente reducida: 10 individuos para optimizar 200 dimensiones en el peor de los casos. Se ha mantenido bajo el tamaño de la población para intentar tener bajo número de evaluaciones total (ventana de recursos consumidos).

Comprobamos, asimismo, como el número de nodos necesarios para la conformación temporal nos limita las soluciones accesibles en la optimización. Su disminución por debajo de un determinado número, que será dependiente del problema a optimizar, hace inaccesible la solución correcta.

Hemos visto cómo *MODS* presenta un comportamiento robusto y eficiente para este problema. Esto nos muestra la capacidad de la optimización marginal para realizar una distribución adecuada de la energía espectral a lo largo del tiempo. En los siguientes experimentos veremos cómo *MODS* también resulta altamente efectivo cuando nuestro observable es un efecto físico real.

## 5.3. Compresión de pulsos

Cuando un pulso viaja a lo largo de un sistema óptico sufre de diversos efectos de dispersión espectrales que afectan a su duración. En general los efectos de dispersión están relacionados con las variaciones del índice de refracción ( $n$ ) con la longitud de onda ( $\lambda$ ). Así, las diferentes derivadas  $\frac{dn}{d\lambda}$  afectaran a la duración del pulso a lo largo de su propagación.

La utilización de técnicas para compensar esta dispersion, de manera que el pulso posea una duración mínima en la región de interacción es importante. Esta compensación se puede realizar mediante diversos métodos experimentales como la utilización de pares de redes de difracción o de prismas [79], pero poseen limitaciones en el orden de dispersión que pueden compensar, así como un carácter estático que supone un problema ante cambios en el sistema experimentales. La utilización de un ajuste dinámico adaptativo en bucle cerrado para la compensación de la dispersión ha sido demostrado con anterioridad [21] [25], y es ampliamente utilizada debido a sus versatilidad y capacidad de compensar efectos dispersivos de orden superior a los montajes estáticos.

En los experimentos de compresión de pulsos hemos utilizado cómo observables dos fenómenos que son dependientes de la intensidad de pulso y, por lo tanto, de su duración temporal: la absorción de dos fotones ( $TPA^{69}$ ) y la generación de segundo armónico ( $SHG^{70}$ ).

En el caso de  $TPA$  se ha realizado la compresión de pulsos sometidos a trino introducido en el amplificador, así como la compresión de pulsos distorsionados mediante ruptura dieléctrica en aire. En ambos casos se ha comparando la velocidad de convergencia de  $MODS$  frente a un algoritmo genético.

En la compresión sobre  $SHG$  se ha realizado compresión de pulsos mediante  $MODS$  utilizando como observable la generación de  $SHG$  en nanocristales de  $BaTiO_3^{71}$ .

### 5.3.1. Absorción de dos fotones

El fenómeno de  $TPA$ , cuyos fundamentos se han visto en el capítulo 2, implica la transición de un electrón, desde su estado de energía fundamental a un estado excitado, mediante la absorción simultánea de dos fotones. Cada uno de ellos no posee por si mismo la suficiente energía para poder salvar la energía entre ambos niveles, por lo que esta se efectúa a través de un nivel *virtual* intermedio. Es esquema del proceso se muestra en la figura 5.16.

En nuestro caso utilizamos la fotocorriente inducida por el proceso de  $TPA$  en

---

<sup>69</sup>Two Photon Absorption

<sup>70</sup>Second Harmonic Generation

<sup>71</sup>Titanato de Bario

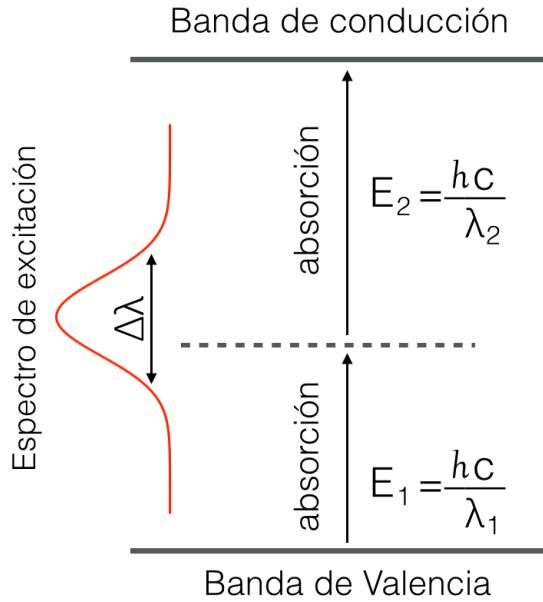


Figura 5.16: Mecanismo de la absorción a dos fotones. Cada fotón individual no posee la energía suficiente para forzar la transición entre la banda de valencia y la de conducción del semiconductor. La energía resultante de la absorción simultánea de dos fotones permite la promoción del electrón a su estado excitado. Estos dos fotones provienen de la banda espectral del pulso de excitación.

un diodo semiconductor. La transición de dos fotones no corresponde a un nivel molecular sino a la transición entre la banda de valencia y la de conducción del semiconductor. Aunque la formulación cuántica del problema presenta diferencias, puede demostrarse [76] que la utilización de fenómenos de *TPA* en semiconductores es válida para determinar el grado de compresión de un pulso, con una señal que escala proporcionalmente a  $\int |E(t)|^4 dt$ . La explicación intuitiva de lo que ocurre es que cuanto mayor número de fotones coexistan por unidad de tiempo mayor será la probabilidad de que la absorción simultánea de dos fotones se produzca. Por lo tanto, un pulso mas corto, donde tenemos mayor densidad temporal de fotones, incrementara nuestra señal.

En los experimentos de optimización se realiza la optimización temporal del pulso láser, sometido a distorsiones temporales con dos orígenes diferentes. En primer lugar usaremos una expansión temporal debida a la introducción de trino en la etapa de compresión del amplificador. Posteriormente se analizará la compresión de un pulso que sufre distorsiones espectrales y temporales debidas a ruptura dieléctrica en aire.

### 5.3.1.a. Sistema experimental

El sintetizador de pulsos utilizado para la realización de este experimento es el denominado *Sintetizador 1* (tabla 3.3.1, página 34). Utiliza una configuración 4f, con lentes cilíndricas de 258mm de focal y redes de difracción de 2000 líneas, presentando una resolución de, aproximadamente, 0.2 nm/px.

Se realiza la optimización de la fotocorriente generada por *TPA* en un fotodiodo semiconductor de GaAsP<sup>72</sup> (G1115 *Hamamatsu*). En su respuesta espectral, Figura 5.17, vemos cómo no posee absorción a la longitud de onda de irradiación (799nm), con lo que la fotocorriente inducida que detectamos es la debida a la absorción a dos fotones en la banda de 400 nm.

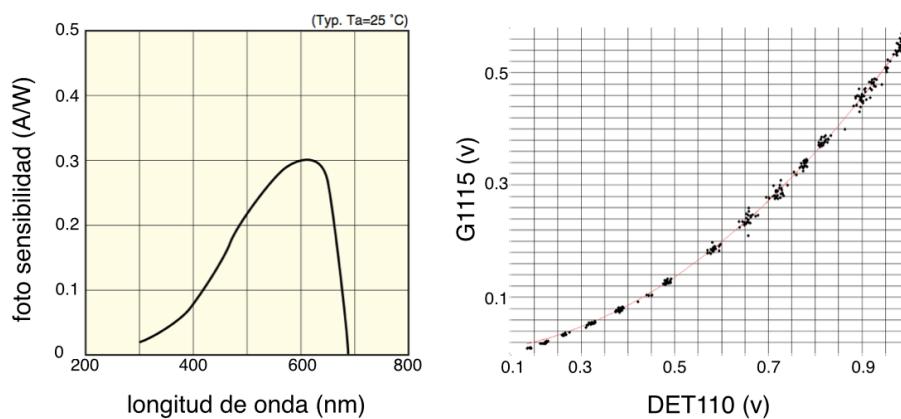


Figura 5.17: Respuesta espectral de absorción del fotodiodo G1115, donde se observa que no posee absorción en 799 nm. Curva de calibración de respuesta no-lineal del fotodiodo de *TPA* G1115 respecto a la del fotodiodo lineal. El ajuste de la respuesta ajuste (rojo)  $S = 0,4I^{2,2}$ , esencialmente cuadrático.

Para comprobar su funcionamiento se ha realizado una curva de calibración de la respuesta del fotodiodo con la energía de irradiación. La energía del pulso se ha medido mediante un fotodiodo de silicio (DET110 *Thorlabs*). En la medida se ha utilizado un sistema experimental similar al mostrado en la Figura 5.1, página 87. Podemos ver cómo la respuesta es esencialmente cuadrática, siendo su ajuste a la curva  $S = 0,4I^{2,2}$ .

<sup>72</sup>Fosfuro de Arsenio-Galio

### 5.3.1.b. Optimización de TPA con pulsos expandidos en el amplificador

La expansión temporal de los pulsos se realiza mediante el desajuste de la red de difracción del compresor situado en el amplificador<sup>73</sup> en ambas direcciones, introduciendo trino<sup>74</sup> de diferente signo.

El montaje experimental utilizado se puede observar en la Figura 5.18. El haz procedente del amplificador es manipulado espectralmente en el sintetizador y se realiza la detección de la fotocorriente inducida en el fotodiodo de TPA. Un espejo abatible permite la inserción del pulso conformado en el sistema *FROG* para su caracterización.

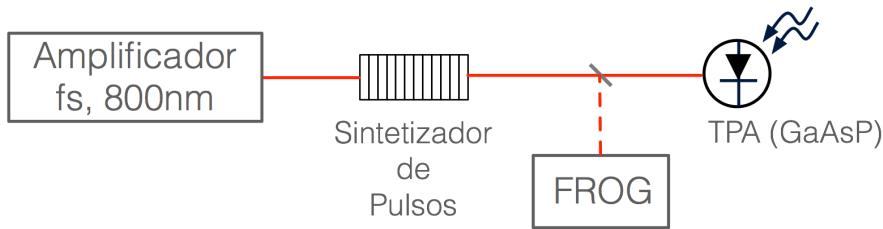


Figura 5.18: Sistema experimental para la compresión de pulsos expandidos en el amplificador

*MODS* ha sido configurado como *MODS/50/3-1-1*, 3 barridos, 1 saltos de búsqueda en el primero y 1 en los siguientes (451 evaluaciones en total), utilizando 50 nodos distribuidos a lo largo de todo el *SLM* y utilizado optimización de costo. Se han utilizado diferentes tipos de fase inicial y barrido, cómo veremos a continuación.

En la Figura 5.19 se muestran las trazas de *FROG* de los pulsos inicial y optimizado, así como las curvas de convergencia obtenidas. En las trazas de *FROG* se han añadido las señales temporales integradas (línea azul) correspondientes a la autocorrelación de tercer orden del pulso. En las trazas del pulso optimizado se incluye como referencia la señal temporal integrada correspondiente al pulso por transformada del amplificador (línea roja punteada) que presenta una duración de 230 fs *FWHM*. Esta señal integrada corresponde a la señal de autocorrelación de tercer orden de un pulso con 190 fs *FWHM*, asumiendo un factor de autocorrelación de tercer orden de 1.22 [80]. Como se ha comentado en la sección 3.3, este sintetizador tenía un problema de ensanchamiento temporal, de hay que el pulso por transformada que ofrece tenga esta duración. Las curvas de convergencia, mostradas a la derecha, están formadas por las mejores evaluaciones de cada una de las optimizaciones individuales, se señalan

<sup>73</sup>Los detalles del amplificador regenerativo se dan en la página 29

<sup>74</sup> Fase cuadrática

las evaluaciones correspondientes a cada uno de los barridos realizados. Las fases obtenidas pueden observarse en la Figura 5.20.

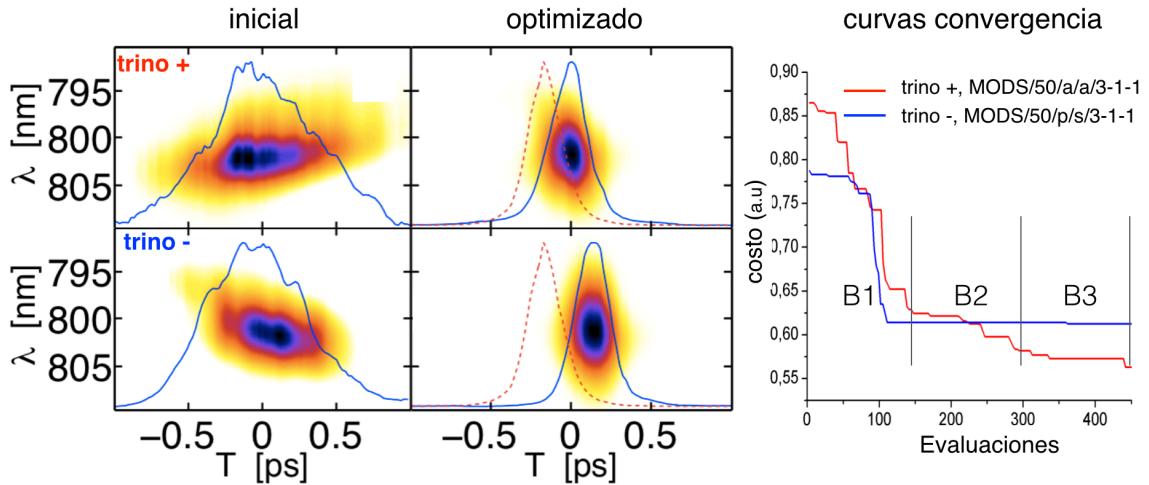


Figura 5.19: Trazas de *FROG* de los pulsos iniciales, con trino de diferente signo, pulso optimizado y curvas de convergencia. Se muestra traza integrada (autocorrelación de tercer orden) de *FROG* (azul) y la correspondiente a un pulso comprimido del amplificador (rojo discontinua).

En ambos casos se ha logrado compensar el trino introducido llevando al pulso a un valor próximo al del pulso por transformada.

La introducción de trino en el espectro genera el desplazamiento temporal lineal de unas frecuencias frente a otras, generando trazas iniciales en las que podemos ver claramente cómo es la distribución resultante de las frecuencias frente al tiempo, que presentan diferente pendiente dependiente del tipo de trino. Tras la optimización los pulsos los pulsos obtenidos no presentan signos apreciables de trino residual.

La traza de *FROG* del pulso inicial con trino positivo nos muestra una expansión temporal hasta los 800 fs *FWHM*, la compresión alcanza 260 fs *FWHM*, que corresponde a un pulso de 213 fs *FWHM*. En esta optimización *MODS* utiliza como punto de partida una fase con valores aleatorios distribuidos uniformemente en el intervalo  $[0, 2\pi)$  y un barrido aleatorio. En la curva de convergencia (rojo) observamos el comportamiento típico de este tipo de barrido. No existe una posición preferencial de optimización, estando las contribuciones a la mejora de señal distribuidas a lo largo de los tres barridos.

En el pulso expandido con trino negativo la expansión temporal alcanza los 720 fs *FWHM*, con una compresión resultante de 250 fs *FWHM*, correspondiente a un pulso de 205 fs *FWHM*. En esta ocasión *MODS* utiliza una fase inicial constante con valor de  $\pi$  radianes con recorrido secuencial, como se puede apreciar en la curva

de convergencia (azul), la optimización sólo se produce durante el primer barrido, con la evolución esperada para el barrido secuencial, relativa a la energía asociada al espectro. En el resto de los barridos no se logra mejora alguna. Se observa asimismo un desplazamiento temporal de la señal optimizada. No hay ningún condicionamiento de anclaje temporal en la optimización por lo que la solución puede existir en cualquier punto dentro de la ventana de control del pulse shaper [37]. Es la consecuencia de la multimodalidad de orden 1 que vimos en el capítulo 4.2.7.

La diferencia de comportamiento entre ambas convergencias creemos que está asociada al ruido de modulación de amplitud y no a problemas derivados del punto de partida en el espacio de soluciones ni al tipo de barrido utilizado. Al utilizar una fase aleatoria inicial no sólo se produce una dispersión temporal de la energía del pulso (fig. 4.14), sino que aparecen, en mayor o menos medida, los efectos de atenuación espectral vistos en el capítulo 5.1.3. De esta forma la atenuación espectral producida cuando se efectúa la exploración de cada nodo queda *camouflada* entre la atenuación general introducida, pudiendo percibirse sus efectos asociados de modificación temporal. También se aprecia en la curva de convergencia cómo su valor de costo inicial es peor que el de fase plana. Cuando el punto de partida es una fase plana la detección de mejoras temporales en la señal se produce sólo cuando el nivel de la perturbación por modulación de amplitud es inferior al incremento de señal por la estructuración temporal, esto sucede solo en los primeros estadios de la optimización.

Aun así, la compresión alcanzada es similar en ambos casos, mostrando una duración en el pulso resultante ligeramente superior al de referencia (23 fs y 15 fs *FWHM*), que podemos considerar que queda dentro del error de la medida de *FROG*, puesto que se ha utilizado una resolución temporal de 20 fs en la adquisición de la traza.

Aplicando los algoritmos de recuperación de fase a las trazas de *FROG* obtenidas podemos reconstruir la fase que poseen los pulsos antes y después de la optimización. En la Figura 5.20 podemos ver las fases recuperadas de los pulsos iniciales y finales, así como las fases de compensación aplicadas por *MODS*.

Podemos observar cómo las fases de los pulsos iniciales se corresponden con fases cuadrática de diferente signo, correspondientes a los diferentes desajustes del compresor del amplificador. La fase obtenida presenta una curvatura contraria, de forma que su adición a la fase residual del espectro nos ofrece una fase esencialmente plana. El efecto de no ajuste de fase se observa claramente en el caso de trino negativo. Recordemos que esta fase se inicializada en  $\pi$  rad. El ajuste de fases está sometido a los efectos que hemos visto en la Figura 5.6, página 93, en la que se muestra el efecto de modulación de amplitud al modificar un sólo nodo (aunque esta perturbación se ha conseguido llevar a valores inferiores a los observados en la Figura 5.6). El efecto neto es que, excepto en cierta áreas, el resultado de la modificación de un nodo sobre la fase genera una perdida de energía en el haz menor al incremento producido por la compresión, imposibilitando la optimización.

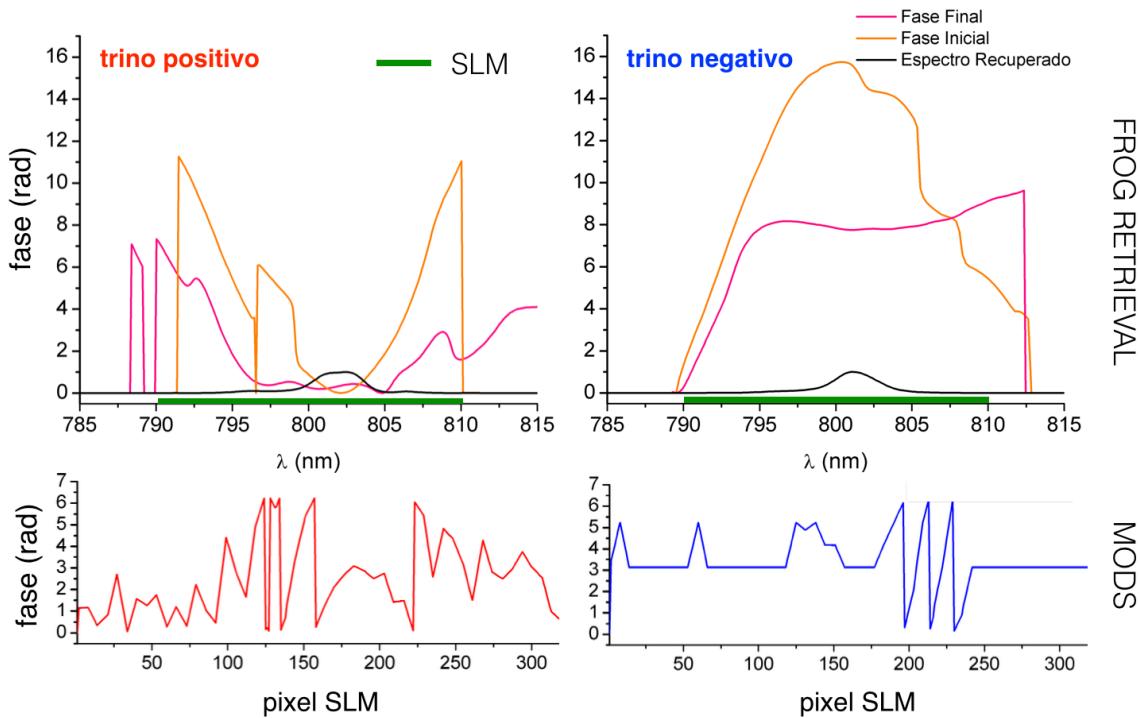


Figura 5.20: Fases recuperada a partir de las trazas de FROG de los pulsos expandidos y comprimidos y fases de compensación obtenidas. La linea verde horizontal indica la posición del *SLM* frente a las fases recuperadas.

### 5.3.1.c. Optimización de *TPA* pulsos distorsionados mediante ruptura dieléctrica en aire

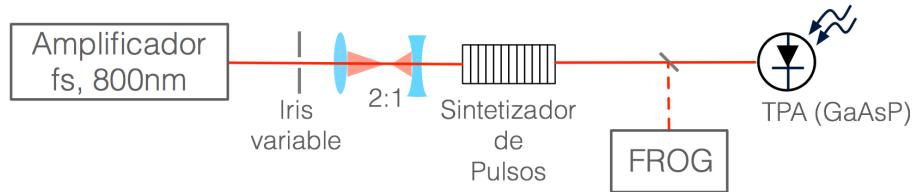


Figura 5.21: Sistema experimental utilizado para la compresión de pulsos distorsionados mediante plasma en aire. La ruptura dieléctrica se genera utilizando un telescopio 2:1 previo al sintetizador de pulsos. El control de la energía del pulso se realiza mediante un iris de apertura variable.

En el ejemplo anterior la duración del pulso inicial se ha aumentado mediante un mecanismo lineal como es la introducción de trino mediante el desajuste de la etapa

de compresión del amplificador. En este caso la distorsión del perfil temporal del pulso se realiza a través de un mecanismo no-lineal. Producimos ruptura dieléctrica en el aire. Al enfocar el pulso suficientemente en aire se producen mecanismos de absorción multifotónica, formación de plasma y automodulación de fase que distorsionan su perfil temporal de intensidades [81]

El esquema básico utilizado en el experimento se muestra en la Figura 5.21. El pulso de salida del amplificador, esta vez comprimido a su mínima duración de  $\approx 130$  fs *FWHM* atraviesa un telescopio (2:1) en cuyo foco la densidad de potencia alcanzada es suficiente para inducir ruptura dieléctrica por absorción multifotónica (en el aire), lo que genera distorsiones temporales en el pulso. La energía del pulso y por tanto la ruptura dieléctrica, se controla mediante una apertura variable previa al telescopio. En todos los casos se ha mantenido la energía por debajo del límite para la generación de luz blanca [82] [83]. Al estar la fuente de distorsión situada antes del sintetizador de pulsos, la generación de luz blanca no sólo implicaría la distorsión temporal, sino el bombeo de energía hacia longitudes de onda que quedarían fuera de las especificaciones sintetizador, haciendo imposible su recuperación temporal.

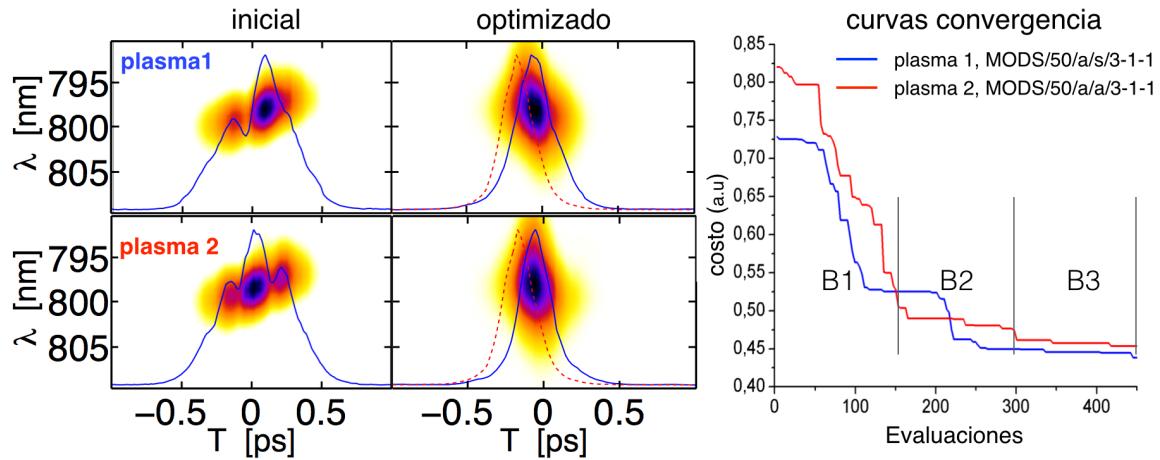


Figura 5.22: Trazas de FROG de los pulsos iniciales bajo diferentes condiciones de generación de plasma (*plasma1*, *plasma2*), pulso optimizado y curvas de convergencia. Se muestra la energía temporal integrada de las trazas de FROG (traza azul) y la correspondiente a un pulso comprimido del amplificador (traza roja discontinua). Curvas de convergencia asociadas a ambas optimizaciones

Mediante dos aperturas diferentes del iris variable se han generado los pulsos temporalmente distorsionados que se muestran en la Figura 5.22, denominados *plasma1* y *plasma2*. Se muestran, asimismo, las curvas de convergencia obtenidas. La señal temporal integrada de la traza se muestra como una línea azul. En esta ocasión los

pulsos no sufren una expansión temporal tan acusada como en el anterior, pero sí podemos ver cómo se produce una estructuración temporal diferente en ambos casos. Podemos apreciar cómo se observa una clara distorsión en la distribución espectral de frecuencias.

En ambas configuraciones la anchura temporal alcanzada como consecuencia de la distorsión no-lineal es de aproximadamente 500 fs *FWHM*, siendo difícil realizar una estimación precisa debido a la estructuración anteriormente mencionada. Después de la optimización en ambos casos se consigue una reducción temporal cercana al óptimo, presentando trazas de autocorrelación de 280 fs en el caso de *plasma 1* y 250 fs en el de *plasma 2*. En ambos casos se observa un ensanchamiento espectral aparente en las trazas optimizadas. Esto es debido a los diferentes rangos de energía en los que hay que situar el sistema FROG para la detección, pero entendemos que es un artefacto de medida.

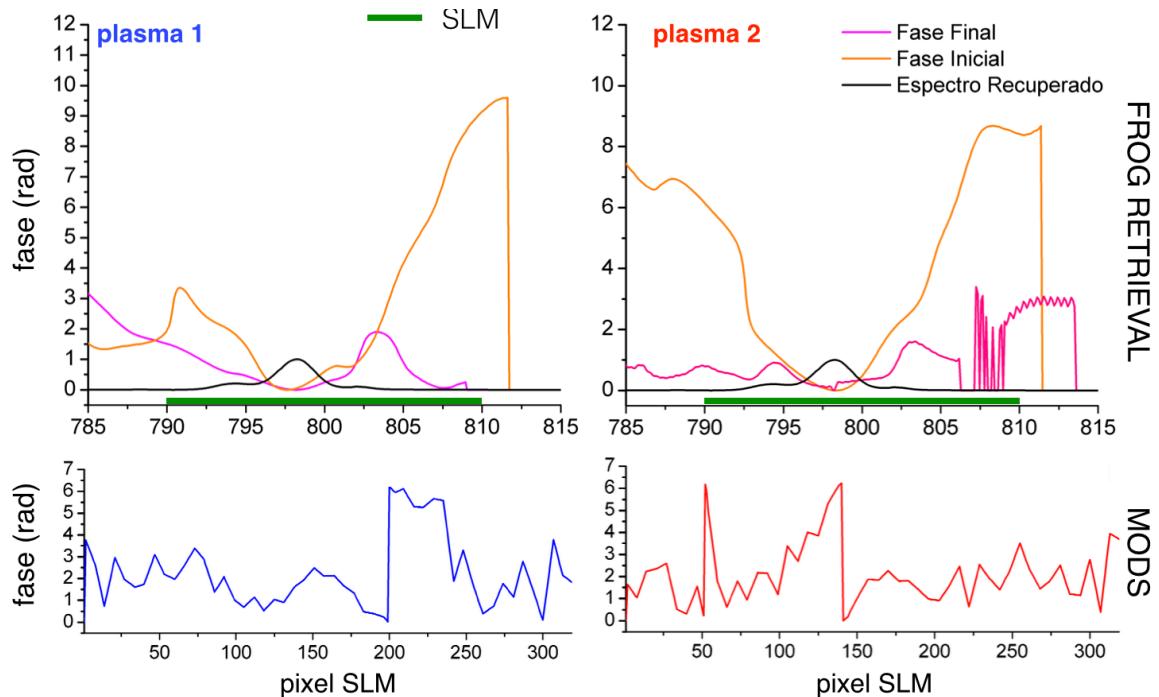


Figura 5.23: Fases recuperadas a partir de las trazas de FROG de los pulsos expandidos y comprimidos y fases de compensación obtenidas.

La configuración para la optimización en el caso de *plasma 1* es *MODS/50/a/s/3-1-1*, para *plasma 2* se utiliza *MODS/50/a/a/3-1-1*. En ambos casos se inicializa la fase de forma aleatoria con una distribución uniforme en el rango  $[0 - 2\pi]$ .

En el comportamiento de las curvas de convergencia se ve reflejado el tipo de barrido utilizado. En el caso de *plasma 1* (secuencial) la curva muestra una forma

sigmoidal. En el de *plasma 2* (aleatorio), la contribución a la optimización se encuentra distribuida a lo largo de todo el barrido. En ambos casos se consigue mejorar la señal en todos los barridos.

Las fases obtenidas, así como las fases recuperadas a partir de las trazas de *FROG* se muestran en la Figura 5.23. Nuevamente, estas fases recuperadas hay que entenderlas de forma cualitativa. Se observa cómo la generación de plasma se traduce en un chirp positivo sobre el espectro, con una cierta modulación. Las fases obtenidas por *MODS* en ambos casos corresponden a fases de compensación de signo inverso.

### 5.3.2. Generación de Segundo Armónico en la nano-escala

La generación de segundo armónico (SHG) emitida por un cristal no lineal ha sido ampliamente usada como método de compresión de pulso láser ultracortos ya que la señal de  $SHG \propto \int |E(t)|^4 dt$  y por lo tanto nos proporciona una medida efectiva de la compresión del pulso. Veamos, someramente, cuál es el mecanismo subyacente en el proceso [84].

Cuando el campo electromagnético  $E$  se propaga por un medio ejerce una fuerza sobre los electrones exteriores de los átomos débilmente ligados. En un medio lineal isótropo la polarización eléctrica resultante es paralela y directamente proporcional al campo aplicado. Si consideramos un campo armónico podemos expresar la polarización  $P = \epsilon_0 \chi E$ , donde  $\chi$  es la susceptibilidad eléctrica del medio y  $\epsilon_0$  su constante dieléctrica. Estas dos componentes,  $P$  y  $E$ , tienen una relación lineal. como vimos en el capítulo de *Fundamentos*, si la energía del campo  $E$  posee la intensidad suficiente, aparecen términos anarmónicos en la respuesta óptica, por lo que la polarización en régimen no lineal se expresa mediante un desarrollo en serie:

$$P = \epsilon_0(\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \dots) \quad (5.3)$$

donde los términos no lineales  $\chi^{(2)}, \chi^{(3)}, \dots \ll \chi^{(1)}$ .

Si consideramos  $E$  en la forma  $E = E_0 \operatorname{sen}(\omega t)$  la polarización resultante sería

$$P = \epsilon_0(\chi E_0 \operatorname{sen}(\omega t) + \chi^{(2)} E_0^2 \operatorname{sen}^2(\omega t) + \chi^{(3)} E_0^3 \operatorname{sen}^3(\omega t) + \dots) \quad (5.4)$$

que podemos expresar como

$$P = \epsilon_0 \chi E_0 \operatorname{sen}(\omega t) + \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} E_0^2 (1 - \cos(2\omega t)) + \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} E_0^3 (3 \operatorname{sen}(\omega t) - \operatorname{sen}(3\omega t)) + \dots \quad (5.5)$$

Es decir, a medida que el campo atraviesa el medio isótropo la onda crea una onda de polarización que se propaga por el medio con términos armónicos de orden superior.

El término  $\cos(2\omega t)$  de la ecuación 5.5 corresponde a una onda de polarización eléctrica con el doble de la frecuencia incidente. Aparece en la luz reradiada por los osciladores en régimen armónico que genera el campo sobre los electrones. Esta componente es, precisamente, la Generación de Segundo Armónico (*SHG*).

A medida que el campo se propaga por el material los átomos del mismo generan nuevas ondas a la frecuencia  $2\omega$ , que se encontraran desfasados, interfieren entre ellos debido a la diferente velocidad de propagación de la onda de frecuencia  $2\omega$  frente a la fundamental  $\omega$ . como consecuencia, la eficiencia de generación será máxima si el espesor del material tiene la denominada *longitud de coherencia*, que es del orden de  $\approx 20\lambda_0$ . La descripción de la generación se ha realizado en condiciones alejadas del ajuste de fase (*phase matching*). Para una descripción detallada de las condiciones de ajuste de fase ver [38]. Existen ademas dependencias del tensor  $\chi^{(2)}$  con la simetría del medio. La orientación del campo y de su polarización frente al medio de generación es crítica, en cualquier caso, la generación de armónicos ópticos es rutinaria en los laboratorios.

En este experimento hemos realizado la optimización de *SHG* sobre nanocristales (*NC*) de  $BaTiO_3$ , típicamente de 200 nm. Al ser de un tamaño inferior a la longitud de onda incidente, 800 nm, y a la de coherencia , los efectos de *phase matching* no son críticos [85].

### 5.3.2.a. Descripción experimental

Estos experimentos han sido realizados en el *ICFO*<sup>75</sup> con un sistema laser y sintetizador de pulsos diferente a los descritos en la sección 3. Podemos verlo esquemáticamente en la Figura 5.24<sup>76</sup>.

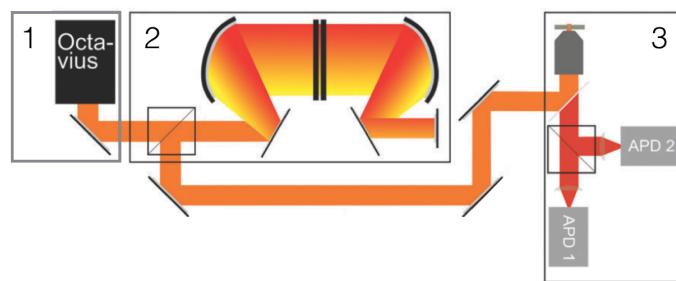


Figura 5.24: Sistema de experimental utilizado en la optimización de *SHG* sobre nanocristales. Fuente láser (1), sintetizador de pulsos (2), microscopio confocal (3)

<sup>75</sup>Institut de Ciències Fotòniques

<sup>76</sup>Figura adaptada de [86]

El sistema experimental consiste en un sistema láser Ti:Zafiro (*Octavius 85M Menlo Systems*) con una longitud de onda central de  $\approx 799\text{nm}$  con un ancho de banda de  $\approx 90\text{nm}$  al 30 % del máximo, que proporciona pulsos de hasta 7fs. La frecuencia de repetición es de 85 MHz, con una potencia promedio de 1 mW. El sistema de conformación temporal es un sistema 4f con un *SLM* de 640 pixeles configurado en doble paso<sup>77</sup>. El sistema de irradiación y adquisición de señal de SH consiste en un microscopio confocal invertido con un objetivo de microscopio con apertura numérica NA=1.3 (*Fluar, Zeiss*) que permite enfocar el haz hasta el límite de difracción. La muestra con los *NCs* de  $\text{BaTiO}_3$  esta montada en una base translacional piezoelectrónica (*MadCityLabs*) con precisión de nanómetros. La señal de *SH* es recogida en reflexión a través del mismo objetivo y medida mediante un fotodiodo de avalancha (*APD, Perkin-Elmer*). Las medidas espectrales se realizan con un espectrógrafo (*Shamrock Sr-303i*) equipado con una cámara emCCD<sup>78</sup> (*Andor iXon*).

En la Figura 5.25 se muestra el espectro del láser utilizado, no es gausiano teniendo dos picos espectrales predominantes en  $\approx 790$  nm y  $\approx 830$  nm. Asimismo se muestra la fase residual natural (rojo discontinuo) que posee y la fase que presenta una vez se ha realizado su optimización mediante *MIIPS* [4].

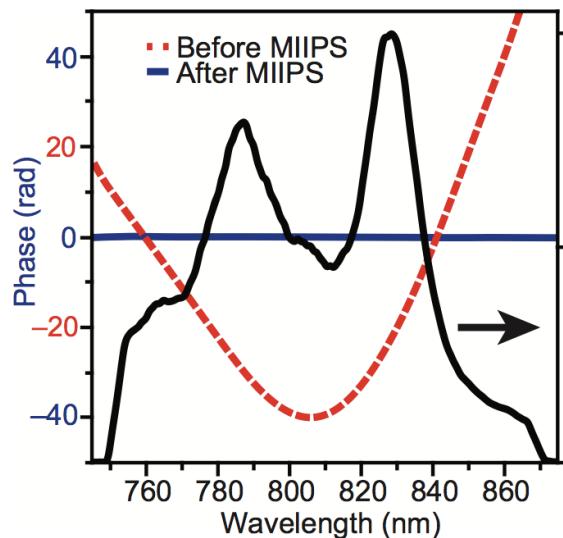


Figura 5.25: Espectro de salida del sistema láser utilizado (negro), junto con su fase residual (rojo discontinuo) y la fase que presenta una vez se ha optimizado mediante *MIIPS* [4]

En los experimentos se han utilizado nanocristales con una tamaños de  $\approx 250$  nm,

<sup>77</sup>Adaptado de MIIPS, Biophotonics Solutions, Inc.

<sup>78</sup>electron-multiplying charge-coupled device

depositados sobre un portaobjetos de microscopio de  $150\mu m$  de espesor. En la Figura 5.26 se muestran nanocristales de  $BaTiO_3$  similares a los utilizadas.

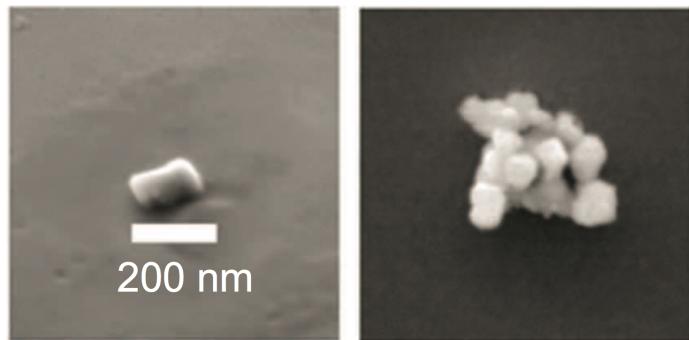


Figura 5.26: Nanocristales de  $BaTiO_3$  similares a los utilizados en la optimización de SHG. Imágenes de microscopio electrónico de barrido.

Los resultados experimentales que se muestran son parte de un estudio de viabilidad de aplicación de *MODS* en la nanoescala sobre el sistema experimental descrito. El objetivo real de la utilización de *MODS* es poder encontrar pulsos optimizados de excitación en experimentos de fluorescencia en *single molecule*, sobre una molécula denominada *DiNaphtho-Quaterrylenebis (Dicarbox-Imide)*, o *DN-QDI* [87]. Dicha molécula sufre de blanqueo de fluorescencia [88], un problema común en los experimentos de fluorescencia sobre moléculas, asociado normalmente a la fotólisis del cromóforo receptor de la radiación y responsable del comportamiento fluorescente. Bajo las condiciones actuales de irradiación presentan tiempos de vida de entre 2 y 10 minutos antes de volverse inactivas. Estos tiempos de vida hacen inviable la aplicación en esta optimización de algoritmos evolutivos, o del propio algoritmo de optimización de MIIPS<sup>79</sup>. Por lo tanto, contar con un mecanismo de optimización rápido para encontrar pulsos adecuados de excitación es fundamental.

### 5.3.2.b. Resultados experimentales

Se muestran a continuación dos resultados experimentales que avalan la viabilidad del uso de *MODS* en la nanoescala. Sobre los datos experimentales se ha superpuesto la imagen de microscopía óptica confocal, correspondiente a un área de  $50 \times 50 \mu m$ , señalando (círculo blanco) el nanocristal en el que se ha realizado la optimización.

El primero de ellos se muestra en la Figura 5.27. Se realiza sobre un nanocristal de  $\approx 200nm$  utilizando *MODS/100/a/s/3-3-3*, con inicialización de la fase en el rango  $[0, 2\pi]$  y optimización de mérito. La optimización requiere 1501 evaluaciones, unas 500 evaluaciones por barrido. El tiempo de adquisición por muestra es de  $\approx 400ms$ ,

<sup>79</sup>invierte del orden de 15 a 20 minutos en lograr la convergencia

lo que proporciona un tiempo de adquisición total de  $\approx 10$  minutos. En la curva de optimización se muestran todas las evaluaciones realizadas. Se logra optimizar en el primer y segundo barrido, alcanzando un valor sobre la lectura del *APD* 6 veces superior al inicial. Durante el tercer barrido la señal decae ligeramente, este decaimiento probablemente esté relacionado con la fluctuación en energía del sistema láser.

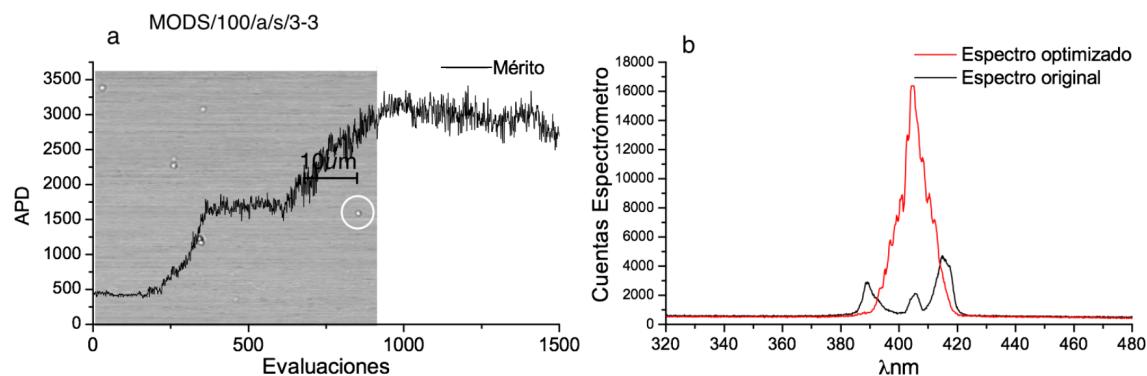


Figura 5.27: Curva de optimización e imagen confocal (a), del *NC* sujeto de la optimización de *SH NC* (circulo blanco). Espectro original y espectro después de la optimización (b).

En la Figura 5.27.b vemos el espectro original del pulso sin optimizar (negro), en el que se aprecian tres picos de emisión en el entorno de los 400 nm. Esto es debido al espectro de excitación (fig 5.25) que dan lugar a los picos de emisión de *SH* observados para la emisión no optimizada, situados en  $\approx 390$  nm y  $\approx 415$  nm. El espectro una vez optimizado el espectro (rojo) presenta un solo pico predominante de emisión centrado en los 410 nm. Se ha conseguido triplicar la emisión integrada ( 380 nm - 420 nm).

Una vez maximizada la señal de *SH* se ha cargado la fase obtenida en el *SLM* y se ha medido la fase final en el pulso láser mediante *MIIPS*. El resultado se muestra en la Figura 5.28, donde podemos ver la máscara de fases cargada y la fase resultante en el pulso, junto con una línea de guía sobre la fase del pulso.

La fase de optimización obtenida es esencialmente una fase cuadrática con cierto nivel irregularidad, que compensa la fase residual del pulso que se observa en la Figura 5.25. La fase del pulso conformado presenta una dependencia lineal. Al igual que ocurría en los anteriores experimentos, esta optimización no tienen ninguna restricción respecto a la ubicación temporal del pulso. Esta componente lineal se traduce en un desplazamiento temporal, no afectando a su duración. Básicamente es una fase plana que nos indica una compresión del pulso cercana a su límite por transformada.

Finalmente en la Figura 5.29 se ilustra el proceso de optimización sobre nanocristales de un tamaño estimado  $\approx 250\text{nm}$ . Esta optimización se ha realizado después de una

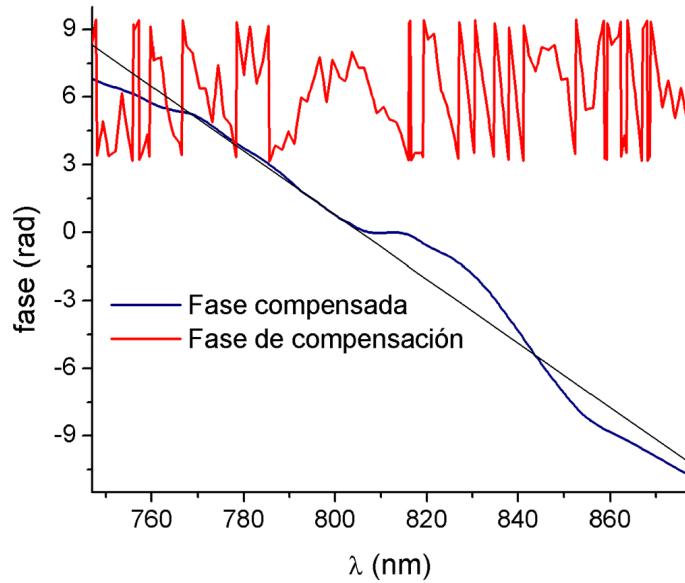


Figura 5.28: Fase de compensación (rojo) y fase del pulso (azul) una vez aplicada la fase de compensación. Se ha incluido una guía visual sobre la fase residual resultante, que es básicamente una fase plana con cierta pendiente, indicativa de un desplazamiento temporal del pulso.

optimización de alineación del sistema, lo que nos permite utilizar, *MODS/100/a/s/1-3* (501 evaluaciones) con lo el tiempo de optimización se reduce a  $\approx 3$  minutos. Se obtiene un incremento de intensidad de señal en el APD superior a 9 veces, respecto al pulso sin optimizar.

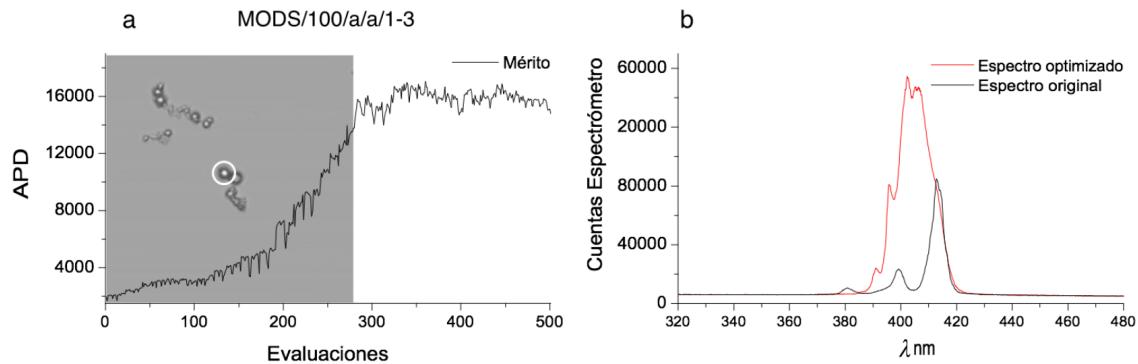


Figura 5.29: Curva de optimización e imagen confocal (a) del *NC* sujeto de la optimización de *SH*. Espectro original y espectro después de la optimización (b).

Espectralmente vemos el espectro de emisión inicial presenta emisión en diferentes

frecuencias con diferentes intensidades. Esto es achacable a la existencia de cierto *trino espacial*<sup>80</sup>, por ello la generación inicial observada es diferente a la mostrada en el ejemplo de la Figura 5.27. En el espectro optimizado aparecen nuevos picos de emisión de *SH*, al igual que en el caso anterior, la emisión integrada optimizada triplica a la original.

### 5.3.3. Conclusiones

Se ha comprobado la capacidad de *MODS* para realizar la optimización de procesos no-lineales de tercer orden (*TPA*) con pulsos sometidos a distorsión temporal con dos orígenes diferentes. El primero de ellos es la introducción de trino (fase espectral cuadrática), de diferentes signos, mediante descompensación de la etapa de compresión del amplificador. El segundo es la distorsión temporal generada mediante mecanismos de ruptura dieléctrica en aire, fenómeno que implica una estructuración de fase espectral mas compleja que el trino. En ambos casos se ha logrado realizar una compensación de las distorsiones de fase existentes en el pulso hasta llevarlo hasta valores cercanos a su límite por transformada. Todo ello se ha realizado optimizando 50 variables en tan solo 451 mediciones del efecto estudiado, esto es, menos de 10 evaluaciones por dimensión. Hemos visto tambien como la selección del punto de partida es importante, fundamentalmente por la presencia de ruido experimental, resultando mas efectivo partir desde una fase aleatoria.

Asimismo se ha comprobado la viabilidad de la aplicación de *MODS* en la nanoscala, utilizado para ello la señal de *SH* (efecto no-lineal de segundo orden) proveniente de nano partículas de *BaTiO<sub>3</sub>* con un tamaño inferior a la longitud de onda de irradiación. El reducido número de evaluaciones necesarias, abre la posibilidad de su aplicación muestras fluorescente con tiempo de irradiación limitado.

---

<sup>80</sup>La distribución de las frecuencias en el foco del haz láser no es uniforme

## 5.4. Alineamiento molecular

El objetivo de esta sección es analizar la viabilidad de *MODS* en experimentos de alineamiento molecular. La modelización teórica de este experimento queda más allá del objeto de esta tesis, por lo que en esta sección esbozaremos las principales características del alineamiento molecular y mostraremos resultados experimentales aplicados a el alineamiento molecular de  $N_2$  atmosférico. Los resultados avalan la viabilidad de uso de *MODS* en este tipo de problemas.

Cuando moléculas con polarizabilidad anisotrópica son sometidas al campo electromagnético de un pulso láser intenso se alinean respecto al eje de polarización del campo aplicado. Este proceso puede ser clasificado de dos posibles modos:

- **Adiabático** Sigue cuando la envolvente del campo de alineamiento cambia lentamente en comparación con la escala de tiempo característica del momento rotacional de la molécula alineada. En este caso, una vez desaparece el campo de alineamiento el alineamiento también lo hace [89].
- **No adiabático** Cuando la duración del pulso de alineamiento es mucho más corta que el periodo rotacional. En estas condiciones se genera un paquete de ondas de estados rotacionales que permanece aún cuando la excitación desaparece, generando alineamiento recurrente en fracciones y múltiplos enteros del periodo rotacional [90].

Este último tipo de alineamiento es el que es accesible en nuestros experimentos, dada la naturaleza de nuestro pulso de excitación.

En ausencia de excitación, las moléculas tienen una orientación aleatoria. En presencia de un pulso láser intenso, se induce en ellas un dipolo en la dirección de la polarización del campo. De esta forma se genera un par de rotación en la molécula, que hace que el dipolo minimice su energía en el campo alineándose paralelamente al eje de polarización del campo  $E(t)$ . Al ser la duración del pulso de excitación menor que el periodo rotacional de la molécula, esta recibe un rápido impulso de alineamiento, creándose en la molécula un paquete de ondas rotacional. Una vez que el pulso se ha extinguido, alineaciones y antialineaciones periódicas transitorias se suceden después del alineamiento inicial, que seguirán produciéndose mientras se mantenga la coherencia de los paquetes de onda rotacionales [59]. A este fenómeno se le denomina alineamiento libre de campo<sup>81</sup>, los instantes de alineamiento y de antialineamiento están muy próximos en el tiempo.

La evolución del paquete de ondas rotacional tiene una periodicidad determinada por su *tiempo de recurrencia*,  $T_{rec} = \frac{\pi\hbar}{B}$ , siendo  $B$  la constante rotacional de la molécula. En nuestro caso realizaremos optimización de alineamiento en aire, sobre

<sup>81</sup>field-free alignment

la molécula de  $N_2$ ,  $B = 1,989581\text{cm}^{-1}$  [28]. Existen, asimismo, alineaciones parciales observables en  $\frac{T_{rec}}{2}$ ,  $\frac{T_{rec}}{4}$  y  $T_{rec}\frac{3}{4}$ . El alineamiento es una fuente de birrefringencia, que mediremos de forma analoga a cómo se realiza la medición en *FROG*.

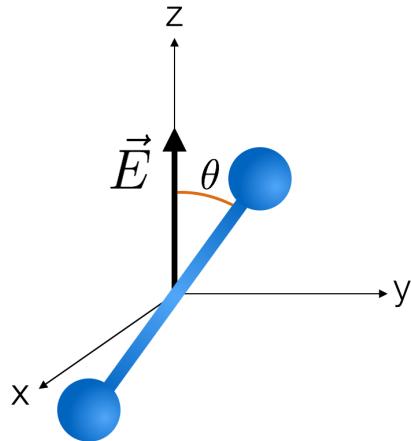


Figura 5.30: Esquema del ángulo  $\theta$  entre el eje de polarización del campo  $\vec{E}$  y la molécula diatómica.

La medida del alineamiento está definida por el valor promedio del valor del  $\langle \cos^2\theta \rangle$  donde  $\theta$  es el ángulo entre el plano de polarización del láser y el eje molecular (fig 5.30). Esta medida nos proporciona un valor de  $\langle \cos^2\theta \rangle = 1$  ( $\theta = [0, \pi]$ ) para una distribución angular perfectamente alineada o  $\langle \cos^2\theta \rangle = 0$  ( $\theta = \pm\pi/2$ ) para una distribución en antialineamiento. En los intervalos entre las alineaciones recurrentes existirá una distribución isotrópica de todos los valores posibles de  $\theta$ , por lo que  $\langle \cos^2\theta \rangle = 1/3$ .

Basandonos en esto consideraremos que cuando el  $\langle \cos^2\theta \rangle > 1/3$  las moléculas están predominantemente alineadas a lo largo del eje de polarización del láser, si el  $\langle \cos^2\theta \rangle < 1/3$ , las moléculas están predominantemente alineadas en el plano ortogonal al eje de polarización del láser.

En la Figura 5.31 [91] se muestra la señal de alineamiento de las moléculas diatómicas  $N_2, O_2$  ( $B = 1,4456\text{cm}^{-1}$ ) y  $CO$  ( $B = 1,9972\text{cm}^{-1}$ ), que presentan tiempos de recurrencia de  $\approx 8,4$  ps para  $N_2$ ,  $\approx 11,6$  ps para  $O_2$  y  $\approx 8,5$  ps para  $CO$ . La presencia de alineamiento en los tiempos  $\frac{T_{rec}}{4}, \frac{T_{rec}}{2}, T_{rec}\frac{3}{4}, T_{rec}\dots$  puede apreciarse. Existen diferentes amplitudes en cada una de estas recurrencias dependiendo de la molécula observada, este hecho está relacionado con la estadística de los espines nucleares, que controla los pesos relativos entre los estados  $J$  pares e impares [92].

En nuestro caso, la optimización se realizara sobre la observación del alineamiento inducido en la molécula de  $N_2$ . Esta presenta un tiempo de recurrencia muy similar al del  $CO$ , pero su cantidad relativa en aire es muy diferente,  $\approx 78\%$  para el  $N_2$  frente al  $\approx 0,035\%$  del  $CO$ , con ello podemos considerar despreciable la contribución del

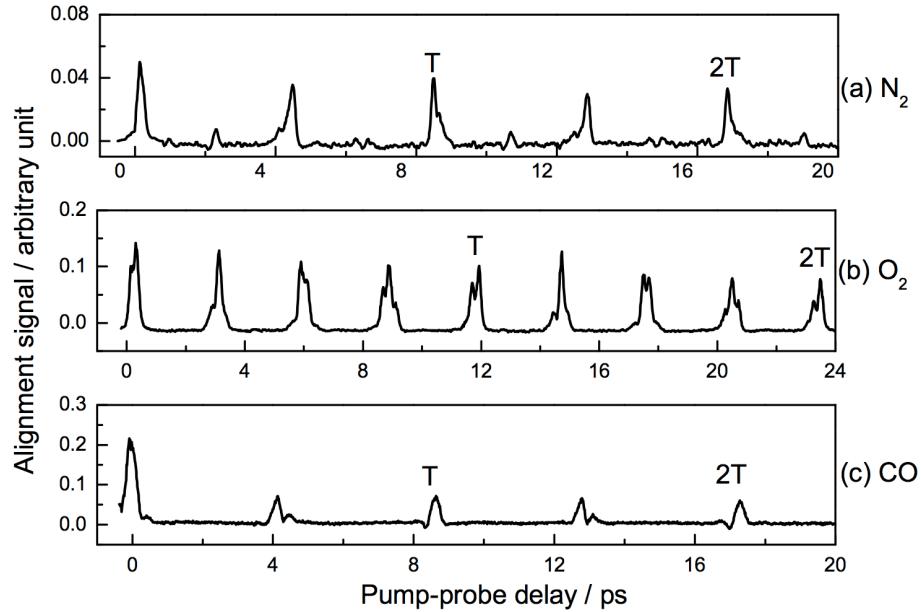


Figura 5.31: Señal de alineamiento para las moléculas diatómicas de  $N_2$  (a),  $O_2$  (b) y  $CO$  (c). El alineamiento ha sido inducido mediante un pulso de 110 fs a 799 nm con una intensidad de  $6 \times 10^{13} W/cm^2$  [5]

$CO$ .

En el alineamiento adiabático el uso de estrategias de optimización de conformación temporal con algoritmos evolutivos ha sido ampliamente estudiado [29] [59] [28] [93], utilizando estrategias evolutivas con resultados diversos. No existe un consenso acerca de la conformación temporal óptima para aumentar el alineamiento frente a la producida por un pulso por transformada. Se han reportado soluciones consistentes en trenes de pulsos [29], dobles pulsos [94] o pulsos con dispersión de tercer orden (*TOD*) [28] entre otras.

#### 5.4.1. Descripción experimental

Para la medición del alineamiento molecular utilizamos la configuración experimental mostrada en la Figura 5.32 Utilizamos para ello el mismo sistema experimental que en las medidas de *FROG* con dos pequeñas variaciones:

- Los haces de excitación y muestreo son ahora independientes. El haz de muestreo proviene del amplificador directamente. El haz de excitación proviene de nuestro sintetizador de pulsos y será el encargado de generar el alineamiento
- El medio de interacción es ahora aire (se ha extraído la lámina de *sf-57*). Los

dos haces interaccionan en aire a una temperatura<sup>82</sup> de  $21^\circ \pm 3^\circ$

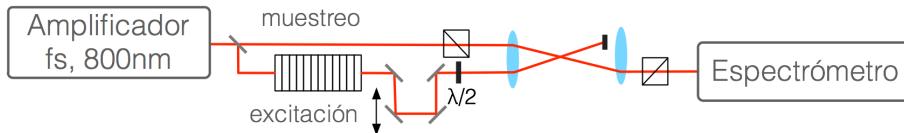


Figura 5.32: Montaje experimental para la generación y medición del alineamiento molecular. La polarización del pulso de muestreo es perturbada por el alineamiento que genera el pulso de excitación. Las polarizaciones de los pulsos de muestreo y excitación están posicionadas a  $45^\circ$ . Estos cambios de polarización son detectados en el espectrómetro.

El objetivo de optimización es maximizar el alineamiento en el  $\frac{T_{rec}}{2}$  de la molécula de  $N_2$ , que ocurre a  $\approx 4,2ps$  del alineamiento inicial. Este tiempo de alineamiento no está influenciado por los momentos rotacionales de otros componentes del aire como  $O_2, CO_2$  o  $CO$ .

La birrefringencia producida por el alineamiento es detectada de forma análoga a la utilizada en las mediciones mediante efecto *Kerr* en *sf-57*, con la diferencia de que en esta ocasión el haz de muestreo ha de ser mucho mas débil que el de excitación, esta técnica, conocida como *weak field polarization* [95], permite que el haz de muestreo no interfiera en el grado de alineamiento de las moléculas pero si se vea afectado por la birrefringencia que genera el alineamiento.

Las trazas de alineamiento son registradas modificando la longitud del brazo de excitación, esto es, la distancia temporal entre la excitación y el muestreo, permitiéndonos observar el estado de la rotación molecular en cualquier momento post-excitación<sup>83</sup>.

En la Figura 5.33 se muestra un ejemplo de traza de alineamiento y su señal temporal integrada. El eje horizontal (tiempo) de las figuras crece hacia la derecha. Cada linea vertical de la imagen corresponde a las frecuencias registradas a ese retardo respecto a la excitación. La figura pues corresponde a un mapa temporal de cómo se están produciendo los alineamientos moleculares. Aunque tienen gran parecido visual con las trazas de *FROG* (energía espectral frente al tiempo) en esta ocasión *no* vemos una traza de autocorrelación. La señal detectada es la resultante de la interacción del haz del muestreo con el volumen focal donde se desarrolla el alineamiento molecular. Es consecuencia de la evolución temporal de la birrefringencia inducida por el alineamiento de las moléculas.

<sup>82</sup>Esta es la temperatura estabilizada del laboratorio

<sup>83</sup>Dentro de los límites que nos impone la longitud de nuestra linea de retardo

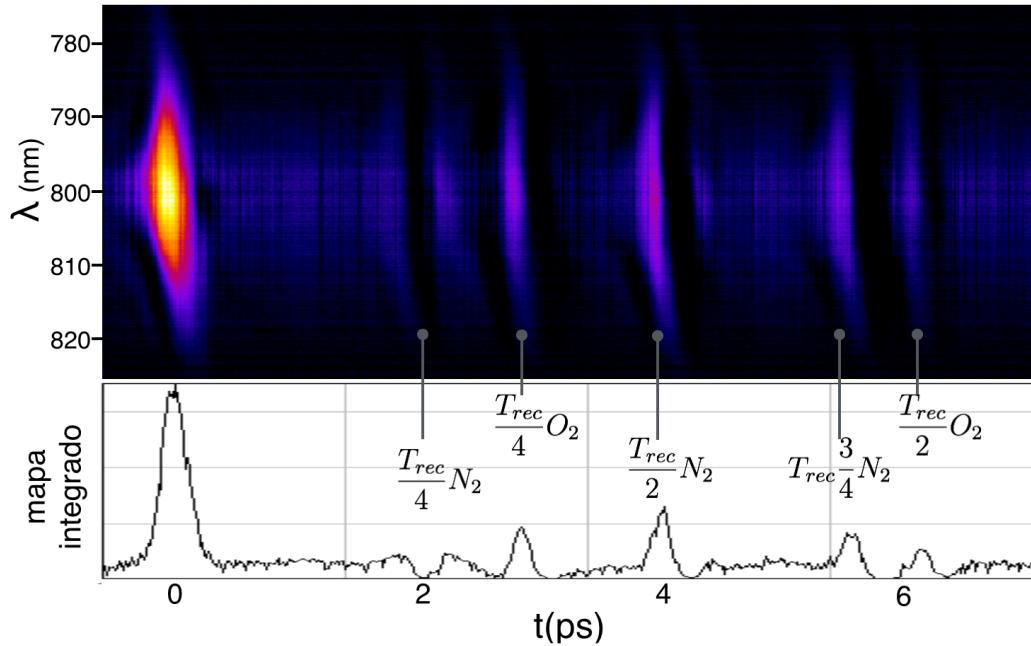


Figura 5.33: Mapa del alineamiento molecular y traza de energía espectral integrada. Se han marcado los diferentes tiempos de recurrencia que se observan para las moléculas de  $N_2$  y  $O_2$

Consideramos  $t = 0$  (tiempo cero) el momento en el que el haz de excitación y el de muestreo coinciden temporalmente. En este punto la señal detectada es significativamente superior a la observada en el resto de la evolución. El pulso genera efecto Kerr en aire cuya detección domina sobre el alineamiento molecular. El efecto Kerr, de origen electrónico, desaparece instantáneamente al extinguirse el pulso de excitación. Posteriormente se observa el fondo de señal producido por la existencia de un cierto grado de alineamiento permanente. Intercalados sobre este fondo de forma regular podemos ver los picos de alineamiento (ascendente) y de antialineamiento (descendente), correspondientes a una detección heterodina de la señal [95]. Se observa cómo, efectivamente, el alineamiento y antialineamiento se suceden inmediatamente en el tiempo.

Los alineamientos y antialineamientos observados son debidos a las moléculas de  $O_2$  y  $N_2$  del aire. La razón para seleccionar el primer  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$  como objetivo de la optimización es que éste no se encuentra en la proximidad de las recurrencias de las de otras moléculas presentes en el aire, excepto la de  $CO$  cuya contribución se considera despreciable.

### 5.4.2. Resultados experimentales

En los experimentos que mostramos el haz de excitación tiene una energía de 60 mW, el de muestreo de 1 mW, a 1 kHz de frecuencia de repetición. Con ello alcanzamos una intensidad en el volumen de alineamiento, de 100-150 TW/cm<sup>2</sup>. Se han utilizados dos objetivos diferentes de alineamiento sobre el mapa de alineaciones, la intensidad de la señal de birrefringencia situada a 4.2 ps del tiempo cero (primer  $\frac{T_{rec}}{2}$  de  $N_2$ ), y de la señal de efecto Kerr en  $t = 0$ . Se ha realizado la optimización con fases conformadas por 25 y 50 nodos, utilizando en ambos casos MODS/p/s/2-2-3, (226 y 451 evaluaciones respectivamente) partiendo de una fase constante=π.

Debido a los problemas de modulación de amplitud que hemos encontrado en el sistema experimental, se ha utilizado un pulso ligeramente expandido hasta alcanzar 250 fs FWHM. Si se utiliza un pulso comprimido cualquier modificación de nodo de la fase generaba una pérdida de energía y la optimización no resulta posible. Esta expansión temporal se ha realizado introduciendo trino negativo mediante el compresor del amplificador.

#### Optimización utilizando 50 nodos

El mapa de alineamiento correspondiente a la aplicación de una fase constante=0 sobre la máscara del SLM se muestra en la Figura 5.34, junto con su traza de intensidad integrada. Se aprecia la señal en  $t = 0$  debida principalmente al efecto Kerr dominante y las posteriores momentos de alineamiento. Se han señalado los tiempos de optimización utilizados para efecto Kerr (a), situado a 700 fs antes de  $t = 0$ , y de  $N_2$  (b), situado 4.2 ps después de  $t = 0$ . El eje temporal de las figuras corresponde al tiempo de mapeado de la señal.

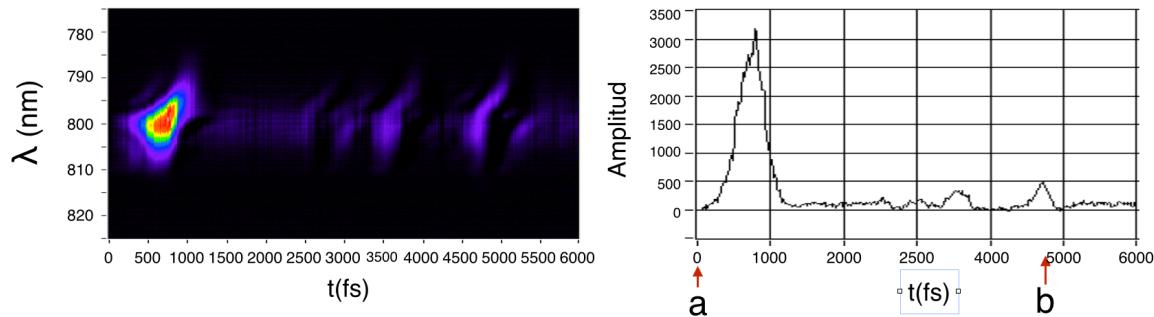


Figura 5.34: Mapa de alineamiento de referencia y su señal integrada correspondiente a un pulso de 250 fs con trino positivo, utilizado como referencia para la optimización mediante 50 nodos. Se ha marcado los tiempos objetivo de optimización correspondientes al efecto Kerr (a) y al primer  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$ (b)

Para la optimización del efecto Kerr se sitúa la línea de retardo de forma que la señal detectada corresponde al punto señalado como a en la Figura 5.37. El resultado

de la optimización se muestra en la Figura 5.35, en la que se muestra el mapa de alineación (a), su traza integrada (b), la fase obtenida (c) y los valores de evaluación obtenidos a lo largo de la optimización (d). Para maximizar la señal detectada en dicho punto el algoritmo obtiene una fase lineal que genera un desplazamiento temporal del pulso. Este desplazamiento se aprecia claramente en como podemos observar en el mapa de alineación y en señal integrada. En esta última no se aprecia un incremento de señal en el efecto Kerr. La señal de alineamiento de  $N_2$ , situada a 4.2ps tampoco sufre una variación significativa. La optimización sólo se produce durante el primer barrido de la optimización, tal y como se observa en la curva de convergencia, en la que se muestran todas las evaluaciones realizadas durante el proceso.

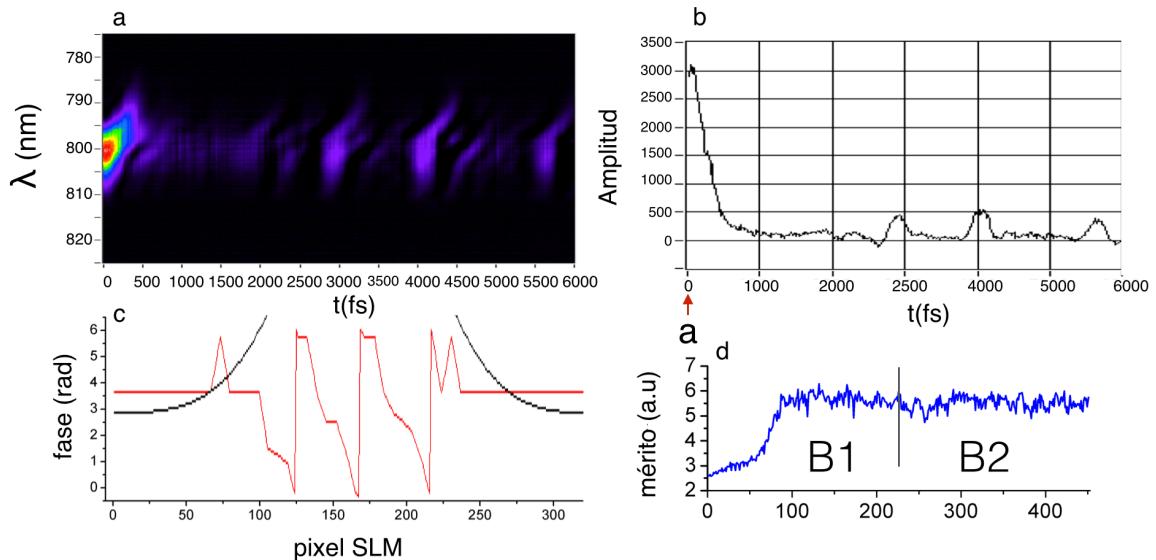


Figura 5.35: Optimización de efecto Kerr inicial a -700 fs de  $t = 0$  utilizando 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d)

Si fijamos el tiempo de observación para la optimización en el tiempo de el primer  $\frac{T_{rec}}{2}$ , obtenemos el resultado mostrado en la Figura 5.36. En esta ocasión si se logra producir una mejora significativa de la señal de alineamiento de aproximadamente el 100 %, pasando de 500 a 1000 cuentas sobre la señal integrada. Asimismo la señal debida al efecto Kerr sufre un ligero incremento, de 3000 a 3500 cuentas. En la fase obtenida se puede adivinar el indicio de una fase cuadrática, pero se aprecia que el ajuste de fase se ha conseguido solo en unos pocos nodos. La curva de convergencia es significativamente mas ruidosa que en el caso anterior.

#### Optimización utilizando 25 nodos

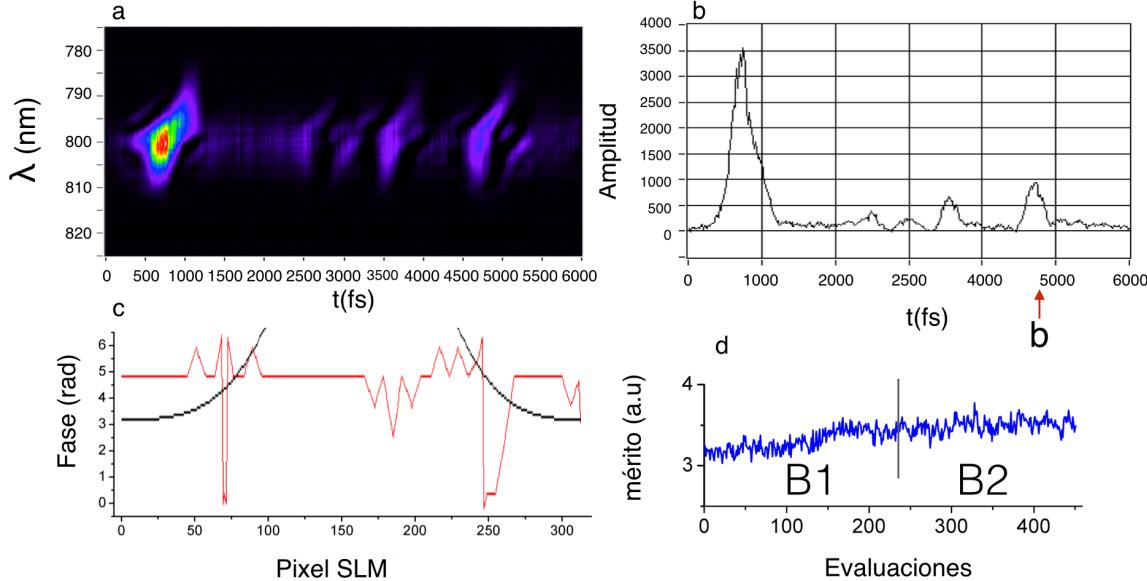


Figura 5.36: Optimización sobre  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$  mediante la utilización de 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d)

Frente los mismos objetivos de optimización se ha disminuido el número de nodos de control sobre la fase. De esta forma conseguimos que la cantidad de energía espectral manejada por cada nodo sea mayor, a costa de sacrificar parte del control temporal.

Hemos tomado una nueva medida de el alineamiento con una fase cero aplicada sobre el *SLM* que se muestra en la Figura 5.37. El resultado es ligeramente diferente al anterior mapa de referencia. Vemos cómo el efecto Kerr en esta ocasión nos ofrece 2750 cuentas sobre la señal integrada y el alineamiento aproximadamente 300. Nuevamente realizamos la optimización en los tiempos señalados como **a** (Kerr) y **b** (alineamiento) en la figura.

Cuando realizamos la optimización de efecto Kerr nuevamente obtenemos un desplazamiento temporal de la señal. En esta ocasión la fase lineal obtenida se encuentra mejor definida, y también se aprecia un ligero incremento de la señal Kerr, pasando de 2750 a 3000 cuentas. Asimismo la señal de alineamiento se incrementa en un 100 %, de 300 a 600 cuentas. La cantidad de alineamiento está directamente relacionada con la generación inicial de efecto Kerr [96]. La optimización se produce, también en esta ocasión, solamente durante el primer barrido.

Al fijar el tiempo de optimización sobre el alineamiento de  $N_2$ , Figura 5.39, se logra un incremento de señal de 300 a 2500 cuentas, con un incremento de la señal Kerr de 2750 a 7300 cuentas. La fase obtenida se encuentra mejor definida que utilizando 50

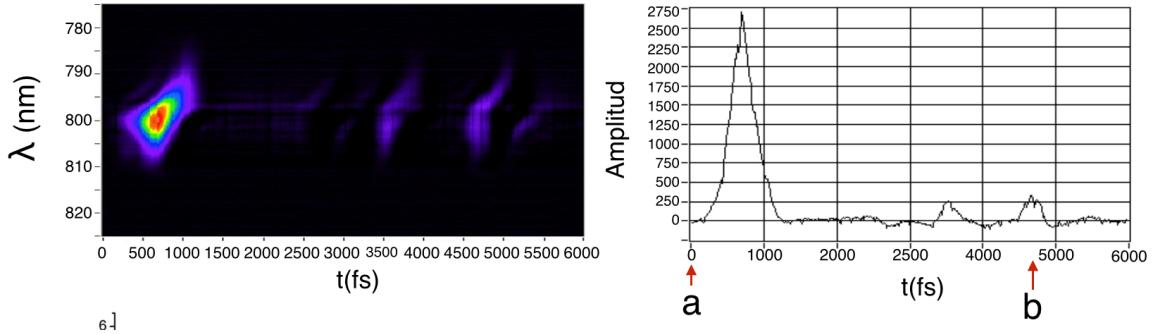


Figura 5.37: Mapa de alineamiento correspondiente a un pulso de 250 fs con trino positivo, referencia para la optimización mediante 25 nodos. Se ha marcado los tiempos objetivo de optimización correspondientes al efecto Kerr (a) y primer  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$ (b)

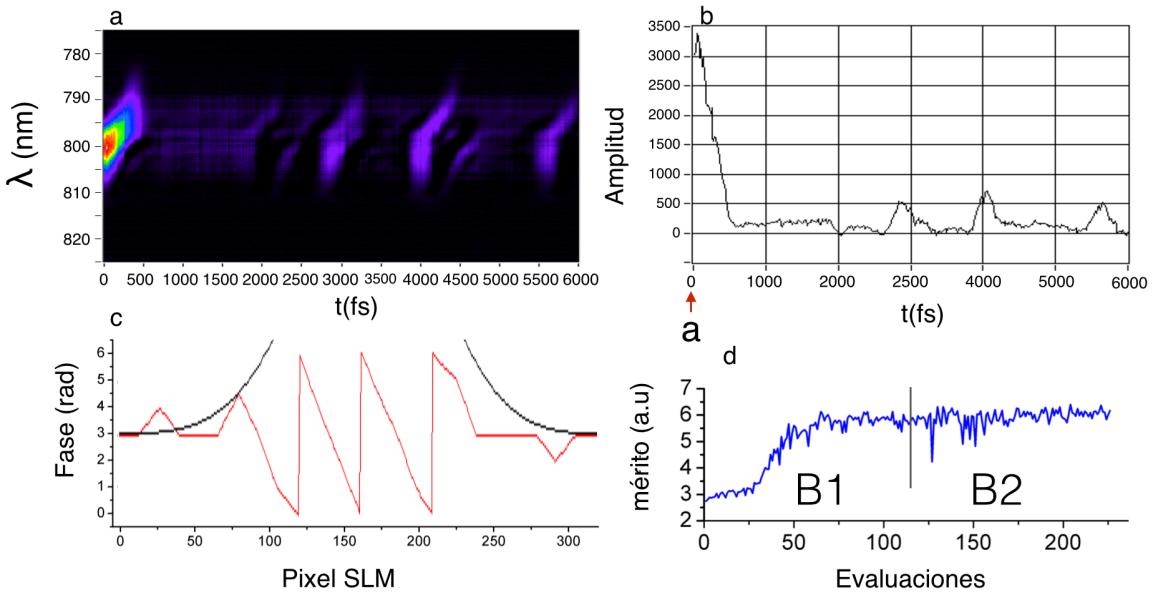


Figura 5.38: Optimización de efecto Kerr inicial a -700 fs de  $t = 0$  utilizando 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d)

nodos. Puede verse cómo su conformación es cuadrática. El manejo de mayor energía por nodo hace posible este resultado, que corresponde a una compresión del pulso inicial.

En la Figura 5.40 se muestran las trazas de *FROG* del pulso original y el obtenido tras la optimización mediante 25 nodos, así como una comparación temporal de los mismos. La forma temporal proviene de la deconvolución de las trazas de *FROG*,

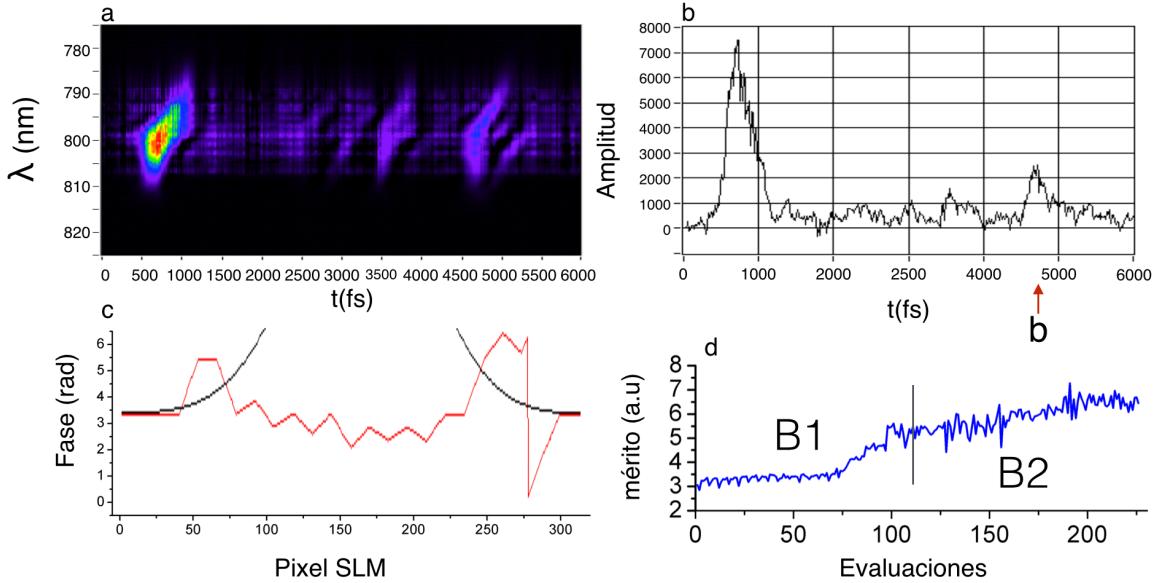


Figura 5.39: Optimización sobre  $\frac{T_{rec}}{2}$  del  $N_2$  mediante la utilización de 50 nodos. Mapa de alineación (a), señal integrada (b), fase obtenida (c) y curva de optimización (d)

el pulso original se extiende  $\approx 250$  fs *FWHM*. Tras la optimización se comprime hasta alcanzar  $\approx 150$  fs *FWHM*.

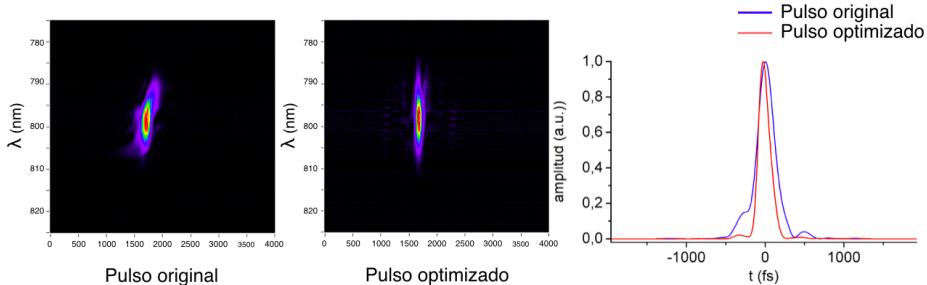


Figura 5.40: Trazas de *FROG* de los pulsos original y optimizado correspondientes a la optimización de  $N_2$  en  $\frac{T_{rec}}{2}$  sobre 25 nodos y pulsos temporales resultantes.

Al utilizar una ventana de observación en la que el efecto predominante es el efecto Kerr, *MODS* genera un desplazamiento temporal del pulso, retrasando la excitación  $\approx 700$  fs. Cuando la observación se sitúa a 4.2ps, genera una fase de compensación del pulso original para incrementar el alineamiento. Este incremento de alineamiento está directamente relacionado con la generación de efecto Kerr inicial, que también aumenta. Surge una discrepancia al observar cómo el valor de señal debida efecto

Kerr es menor cuando el observable es el propio efecto Kerr que cuando se optimiza el alineamiento. Se obtienen  $\approx 3000$  y  $\approx 7000$  cuentas respectivamente. La explicación, que se vera en más detalle en el apartado 5.5.2.d, proviene del comportamiento de *MODS*. Cuando se intenta la optimización directa del efecto Kerr inicial existen dos elementos que influyen directamente el la generación. El primero de ellos es la posición temporal del pulso, el segundo, su compresión temporal. Es necesario primero desplazar el pulso antes de comprimirlo, de hecho la compresión resultaría contraproducente en un primer estadio, ya que la generación de señal se alejaría de la ventana de observación. Este primer ajuste, desplazamiento temporal, se logra correctamente durante el primer barrido. A lo largo del segundo barrido, en ninguno de los dos casos (25 o 50 nodos) se logra realizar una mejora significativa de la señal. Es posible que este comportamiento sea debido a la distancia de salto inicial,  $\sigma$ . Esta distancia disminuye exponencialmente con el numero de barridos ( $B$ ), siendo  $\sigma = \frac{2\pi}{3 \cdot 2^{B-1}}$ , con lo que en el segundo barrido ya podemos encontrarnos por debajo de nuestro límite de detección.

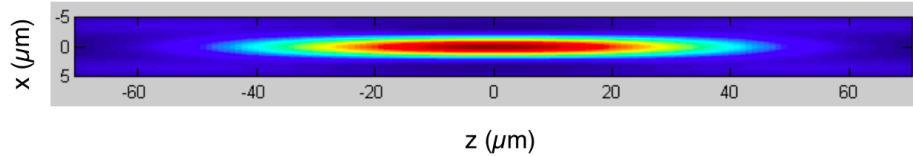


Figura 5.41: Volumen focal del área de interacción, posee una extensión de  $\approx 60 \mu m$  *FWHM* a lo largo del eje de propagación y  $\approx 3 \mu m$  *FWHM* en la cintura de haz

Un segundo efecto que puede estar implicado es el acoplamiento espacio temporal, que tiene como consecuencia un desplazamiento espacial del foco [45]. En la Figura 5.41 se muestra el volumen focal que poseen los pulsos en el área de interacción, longitudinalmente se extienden  $\approx 60 \mu m$  *FWHM* y la cintura de haz tiene tan solo  $\approx 3 \mu m$  *FWHM*. Los pulsos viajan por caminos diferentes, los procedentes del sintetizador de pulsos disponen de unos 5 metros de propagación antes de llegar al área de interacción. La imposición de la fase lineal puede provocar el desplazamiento lateral del foco por acoplamiento espacio temporal, haciendo que el volumen de interacción disminuya. De hecho, si observamos las fases obtenidas para la optimización del efecto Kerr, sobre todo en el caso de 50 nodos, podemos ver como no son exactamente lineales. Esto implicaría que no solo se esta desplazando el pulso, sino que es posible es posible que se esté efectuando una ligera compresión de pulso. Por desgracia no disponemos de las trazas de *FROG* correspondientes a la optimización de efecto Kerr.

### 5.4.3. Conclusiones

Se han mostrado ejemplos que avalan la viabilidad de la aplicación de *MODS* sobre procesos dependiente de la intensidad instantánea del pulso inducidos sobre un material en fase gas.

El mecanismo de búsqueda que utiliza *MODS* lo convierte en un optimizador local. Esto implica que optimizará aquello que disponga en su ventana de observación y que le proporcione una cuenca de atracción. La excitación de las moléculas de nitrógeno en aire nos proporciona dos observables de naturaleza muy diferentes, aunque ambos son detectables gracias a la birrefringencia que inducen; El efecto Kerr, un fenómeno no-lineal de tercer orden, y la alineación recurrente de un paquete de ondas rotacional. *MODS* es capaz de encontrar de forma efectiva una solución diferente para cada uno de estos problemas.

## 5.5. *FROG* con desajuste temporal

Con el fin de probar nuestro algoritmo en problemas donde la solución implique una estructuración temporal diferente a obtener la máxima compresión temporal, hemos diseñado el experimento que denominamos *FROG* con desajuste temporal.

En esta ocasión nuestro pulso debe *escapar* de un laberinto geométrico, a través de una puerta no-lineal. La llave es la fase. El esquema básico del experimento podemos verlo en la Figura 5.42. Nuestro pulso se inyecta en el sistema de medición de *FROG*, en el que se han desbalanceado los brazos de forma que el pulso de excitación atraviesa el medio no-lineal 1ps *antes* que el de muestreo. En estas condiciones el pulso de muestreo es rechazado en el analizador al no existir solapamiento con el pulso de excitación. El problema consiste en encontrar la conformación temporal que permita al pulso de muestreo atravesar el analizador. La solución al problema exige bombar energía del pulso a la posición temporal adecuada, para que el muestreo y la puerta Kerr coexistan temporalmente.

### 5.5.1. Descripción experimental

Para la realización de este experimento se ha utilizado el sistema experimental de *FROG*. Su representación esquemática se muestra en la Figura 5.42. El principio básico de funcionamiento de *FROG*<sup>84</sup> es la medición de la birrefringencia inducida por efecto Kerr que se produce en un medio no-lineal. El pulso de entrada se divide en dos: un pulso de excitación y otro de muestreo muestreo. El pulso de muestreo viaja a través de un conjunto polarizador-analizador cruzados. Gracias a la rotación de polarización producida por la birrefringencia inducida en el medio no-lineal (lámina de SF57) por el pulso de excitación, una porción de su energía es capaz de atravesar el analizador, y es medida mediante el espectrómetro. Cuando existe solapamiento espacial y temporal la maximización de la señal de birrefringencia se consigue con la máxima compresión de pulso.

Mediante la linea de retardo situada en el haz de excitación podemos alejar o acercar temporalmente ambos pulsos. En este experimento alejamos temporalmente los pulsos 1ps, equivalente a  $\approx 10$  veces la anchura del pulso original. De esta forma a la generación de efecto Kerr le hemos añadido un problema geométrico, en forma de diferencia de camino óptico. El reto de optimización es encontrar el pulso adecuado para que se maximice la señal en el espectrómetro, es decir, para que los dos pulsos puedan coexistir temporalmente sobre el medio no-lineal.

Bajo estas condiciones solo existe solapamiento temporal de los pulsos en sus colas, la energía esperada para un pulso gausiano en una ventana localizada a 10 FWHM de su centro será de aproximadamente  $1E^{-5}$  de su valor máximo. Intuitivamente para

---

<sup>84</sup>Una visión mas amplia de *FROG* se da en el Capítulo 3

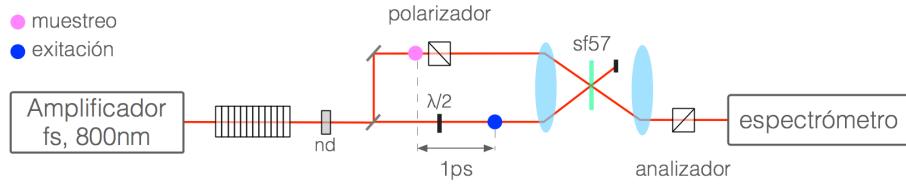


Figura 5.42: Representación esquemática de los pulsos de excitación y muestreo en un sistema de FROG con los brazos desbalanceados. El pulso de muestreo y excitación se han separado 1 ps, de forma que su interacción sobre el medio no-lineal (*sf57*) es mínima

poder generar el efecto puerta Kerr en el momento en el que el pulso de muestreo atraviesa la lámina de *sf57* el pulso ha de dividirse en dos subpulsos con una separación temporal igual a la diferencia de camino óptico entre ambos brazos (1ps). De esta forma cuando el primer subpulso del muestreo llega a la lámina el segundo del haz de excitación general la puerta.

Hemos realizado tres tipos de experimentos. En el primero compararemos el desarrollo de *MODS* frente a el algoritmo genético (*AG*), utilizando el *Sintetizador 1* y estando presente el *SSA*<sup>85</sup> a la salida del amplificador. En el segundo compararemos *MODS* frente a el *AG* utilizando el *Sintetizador 2*, sin la presencia del *SSA* y, finalmente, en el tercero comparamos desarrollo de *MODS Differential Evolution (DE)*.

Para la realización de las medidas de las trazas de FROG utilizamos un filtro neutro con densidad óptica (OD) OD1, bajo estas condiciones no es posible detectar la señal producida en el tiempo de optimización dada la poca energía existente en el pulso de excitación a 1 ps, por lo en el proceso de optimización dicho filtro neutro es sustituido por un OD0.3, lo que nos proporciona una señal 1000 veces mayor.

## 5.5.2. Resultados experimentales

### 5.5.2.a. Comportamiento de *MODS* frente a *AG* sobre el sintetizador 1

En este experimento la detección de la señal de birrefringencia se ha realizado mediante un fotodiodo lineal (DET110, *Hamamatsu*) en vez de utilizar el espectrómetro del sistema *FROG*. El haz procedente del analizador se enfocado sobre el fotodiodo mediante una lente de 10cm de focal. La señal se registra mediante un osciloscopio (*Yokogawa DL9000*) con un promediado de 8 pulsos. Se ha utilizado el sintetizador 1 cuyas características se muestran en la tabla 3.3.1, página 34. Durante estos experimentos se encontraba presente el *SSA* a la salida del amplificador regenerativo.

<sup>85</sup>Single Shot Autocorrelator, introducía importantes variaciones de duración de pulso

Tal y como se describió en el apartado 5.1.3 este elemento generaba una considerable variación temporal del pulso.

Se ha utilizado barrido secuencial utilizando dos tipos de inicializaciones de fase y diferente número de saltos. Se muestran los resultados de *MODS/50/p/s/1-3* y *MODS/50/a/s/1-4* (en adelante *MODSp* y *MODSa*) con fase inicial aleatoria uniforme  $[0, 2\pi]$ . Invierten 251 y 301 evaluaciones respectivamente. Para el *AG* se utiliza una población de 30 individuos<sup>86</sup> con élite de 2, codificación de 6 bits, una probabilidad de mutación de 0.05, probabilidad de cruce 0.8 y con una inicialización uniforme de la población en el rango  $[0, 2\pi]$ . Se permite la ejecución durante 84 generaciones, lo que nos da un total de 2520 evaluaciones.

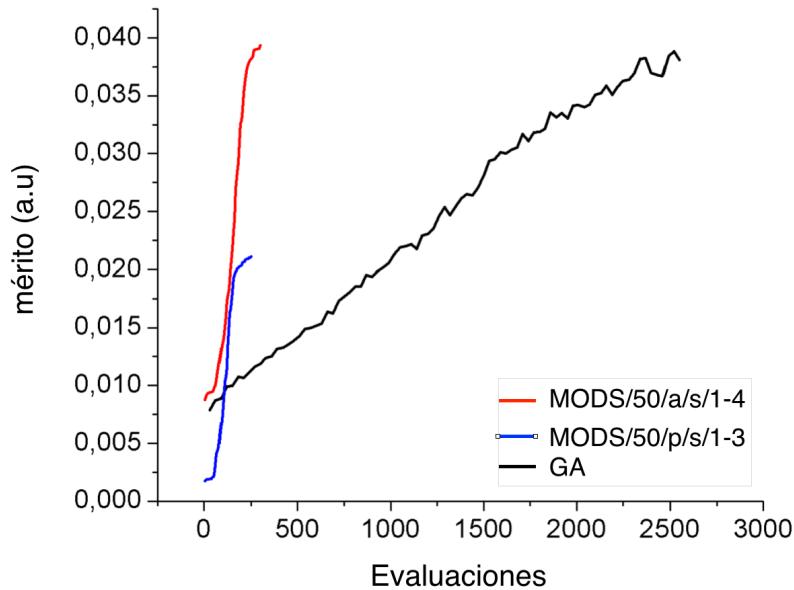


Figura 5.43: Curvas promedio de los algoritmos probados. En promedio, *MODSa* alcanza el mismo nivel de optimización que el *AG* pero utilizando un número de evaluaciones 8 veces menor.

Para realizar la comparación entre *MODS* y *AG* se realizan 20 lanzamientos de cada algoritmo, utilizando evaluación de mérito, en la Figura 5.43 podemos ver las curvas de convergencia obtenidas.

Existe una notable diferencia de rendimiento entre *MODSp* y *MODSa* que es achacable al fenómeno de modulación de amplitud residual que se produce al trabajar con una fase plana. Este efecto se ve amortiguado, como hemos visto en anteriores experimentos, al trabajar con fases aleatorias. Las diferencias que se aprecian en el punto de partida de ambas convergencias son directamente producidas por la fase

<sup>86</sup>Se ha intentado la optimización con tan solo 10 individuos, pero la optimización era inviable

inicial. Las fases aleatorias nos proporcionan pulsos temporalmente dispersos, por lo que la interacción entre las energías del pulso de excitación y el de muestreo es mayor que cuando trabajamos con fase plana, cuya energía está concentrada a 1ps del pulso de muestreo. La evolución de la curva de convergencia del *AG* es prácticamente lineal, quizás se comienza a apreciar cierta saturación en el último estadio de la optimización. En promedio la solución alcanzada por *MODSa* alcanza el mismo valor que *AG* 8.4 veces más rápido.

Para observar con más detalle la evolución de cada uno de los algoritmos mostramos cada uno de los lanzamientos en la Figura 5.44, donde se ven las curvas de convergencia obtenidas en los 20 lanzamientos. Estas curvas están compuestas por, en el caso de *MODS*, el resultado de la optimización de cada uno de los nodos (50 puntos en total) en el caso del *AG* por el mejor individuo de cada una de las 84 generaciones.

Comencemos analizando el comportamiento del *AG*. Aunque la utilización de elitismo nos asegura la conservación de las mejores soluciones entre generaciones, observamos una gran oscilación en los resultados intergeneracionales. Las fluctuaciones de potencia y temporales del láser, son las responsables (hablaremos de ello al referirnos a la Figura 5.45). Si bien 2840 evaluaciones pueden no ser suficientes para lograr una optimización sobre 50 parámetros en un *AG*, se puede observar en alguna de las curvas individuales indicios de saturación de convergencia. En cualquier caso existe una gran dispersión en las soluciones finales.

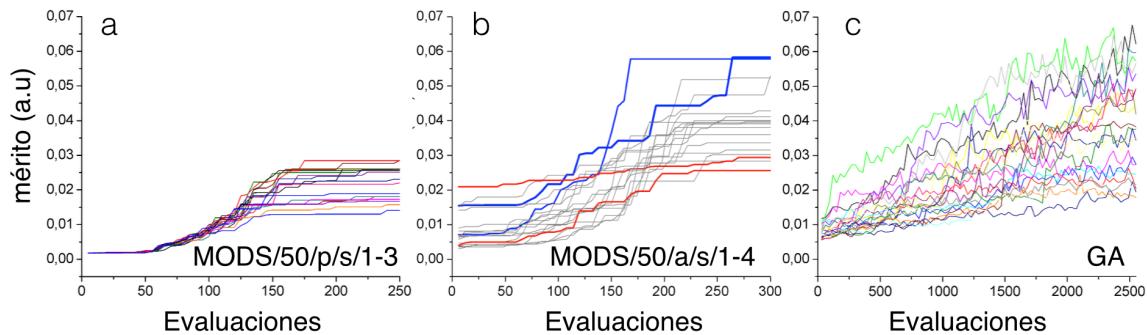


Figura 5.44: Todas las curvas de convergencia de todos los algoritmos

*MODS* muestra su comportamiento típico ante la optimización secuencial, no optimizando en las primeras y últimas evaluaciones, correspondientes a las colas especiales y evolucionando sigmoidalmente en los nodos centrales. En *MODSp* partimos siempre de la misma fase y podemos ver cómo los errores cometidos en la evaluación de los nodos se propagan a lo largo de la optimización, siendo responsables, junto con las fluctuaciones del láser, de la dispersión de soluciones observada. *MODSa* presenta un comportamiento más diferenciado en cada uno de los lanzamientos, pero podemos observar cómo un buen punto de partida no es garantía una buena solución final. De

hecho, alguna de las mejores soluciones ofrecidas tiene alguno de los peores puntos de partida (lineas azules). Los peores resultados pueden tener orígenes de buena o mala calidad (lineas rojas). La dispersión de soluciones que presentan *MODSp* y *MODSa* es inferior, en cualquier caso, a la que ofrece el *AG*. Si bien este último presenta alguna solución claramente superior, el número de evaluaciones requeridas para alcanzarla no parece justificado a efectos prácticos.

Para ver cómo puede afectar el ruido al proceso de convergencia mostramos en la Figura 5.45 el resultado de todas las evaluaciones de mérito<sup>87</sup> realizadas en un lanzamiento de *MODSp* (251 evaluaciones) y en un *AG* que hemos dejado evolucionar durante 5050 evaluaciones (unas 170 generaciones). Cada una de las muestras requiere aproximadamente 1s. En el caso del *AG* estamos observando 84 minutos de optimización. La linea magenta nos muestra la comparación entre los tiempos de ambas optimizaciones. Las oscilaciones de energía a medio plazo del láser que vimos en la Figura 5.2, página 88, son claramente apreciables en la evolución del *AG*, llevando a la evaluación de las fases probadas a niveles de cercanos, e incluso inferiores, a los de partida, cómo sucede alrededor de la evaluación 1500.

Estas fluctuaciones suponen una barrera para el proceso de optimización, falseando el valor de cada una de las fases que se están probando y dificultando enormemente la selección de candidatos. Estas variaciones también afectan a la convergencia de *MODS*, pero al requerir un número mucho menor de evaluaciones su resultado se verá menos afectado por ellas.

Una de las implicaciones de la utilización de un algoritmo determinista es que siempre obtenemos la misma solución ante las mismas condiciones iniciales, sufriendo cierta desviación debida al ruido experimental, tal y como hemos visto en la evolución de las convergencias de *MODSp*. En la Figura 5.46 se muestran las fases obtenidas en cada uno de los lanzamientos de los algoritmos. Ordenados de izquierda a derecha tenemos el resultado de menos a mas estocástico. *MODSp* parte siempre de la misma fase, sus soluciones son virtualmente idénticas. Se introduce una fase lineal en la primera mitad del espectro. *MODSa* también nos ofrece soluciones similares entre si, con una mayor variabilidad debida a sus diferentes fases iniciales. Finalmente, el *AG* presenta una gran variabilidad en las fases finales, debido a su comportamiento estocástico. Creemos que una ventaja del carácter determinista de *MODS* es que puede ayudar en la interpretación de resultados y de procesos subyacentes a los efectos observados en experimentos de optimización.

Para observar temporalmente las soluciones se muestran las trazas de *FROG* de las mejores y peores soluciones obtenidas por *MODSa* y *AG*. Pueden observarse en la Figura 5.47. La aparente modulación de amplitud que se observa en forma de franjas horizontales es consecuencia del propio funcionamiento del sistema de medida [2]. En

---

<sup>87</sup>Los valores a cero, lineas verticales, son debidos a errores de comunicación entre los dispositivos de medida y no han sido considerados por los algoritmos

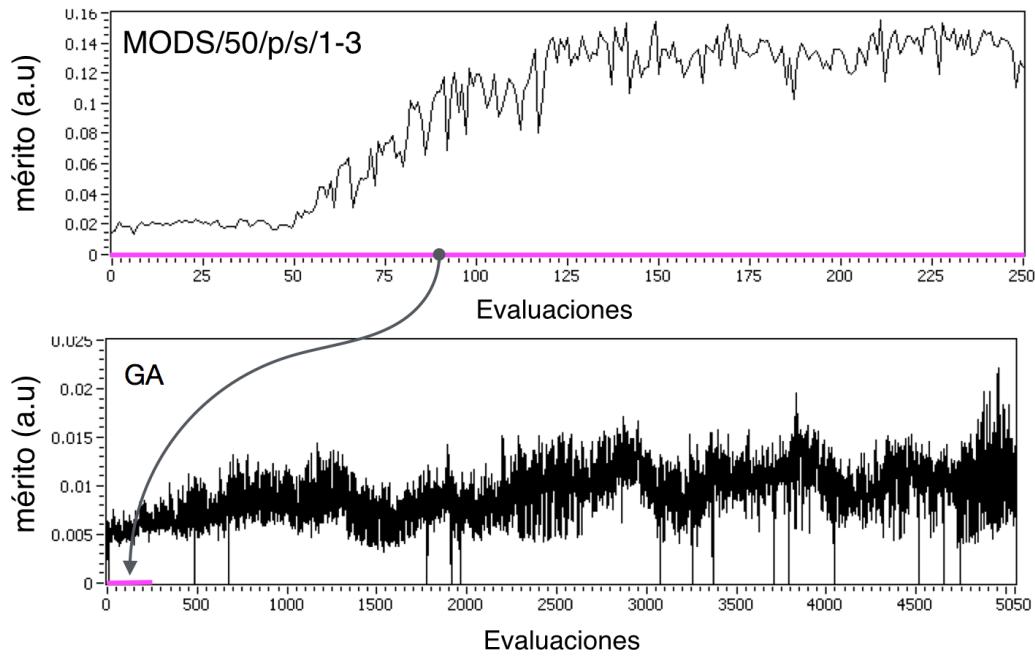


Figura 5.45: Todas las evaluaciones de un lanzamiento de *MODSp* frente a un lanzamiento del *AG* al que se le ha permitido realizar 5000 evaluaciones (1 evaluación por segundo). Se aprecia cómo la evolución de *AG* sigue a las fluctuaciones de energía a medio plazo del láser.

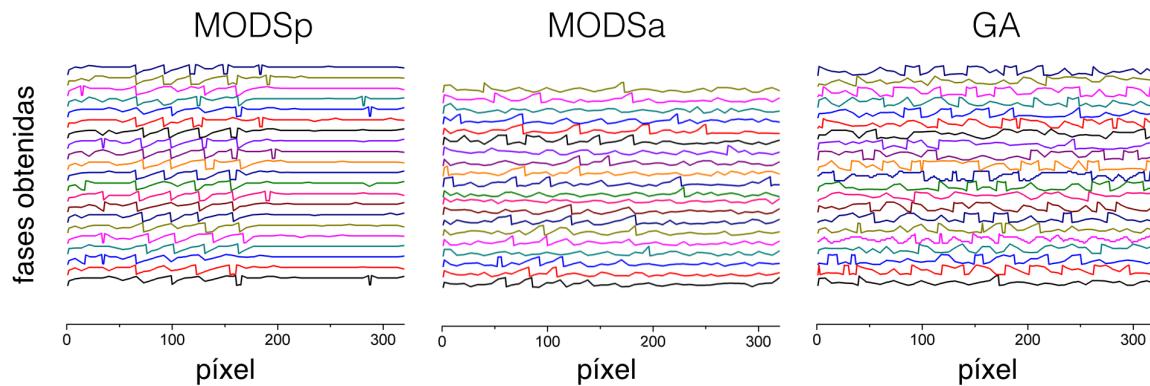


Figura 5.46: Comparativa visual de todas las fases obtenidas en cada lanzamiento por los algoritmos. *MODSp* obtiene el mismo tipo de fases en cada lanzamiento. La fase aleatoria inicial de *MODSa* hace que exista una mayor variedad en las soluciones. *AG* presenta un resultado diferente en cada lanzamiento

todos los casos la energía del pulso se ha distribuido en paquetes de energía separados 1ps, la distancia entre los dos caminos ópticos. De esta forma uno de los paquetes genera la puerta Kerr que otro puede ver, solucionando de esta forma el problema.

El *AG* nos ofrece paquetes de energía no solo a 1ps, sino también múltiplos. En la imagen de la mejor solución de *AG* podemos ver la energía concentrada a 2ps, pero en su peor solución vemos cómo la energía está dispersa a lo largo de todo el tiempo, con cierta tendencia a estar concentrada en intervalos de 500 fs. Este tipo de conformaciones temporales son soluciones locales que permiten la auto-interacción del pulso pero que distan de ser la solución óptima. Por su parte las soluciones de *MODSa* tienen todas un desarrollo adecuado, siendo incluso la peor solución encontrada, una solución aceptable.

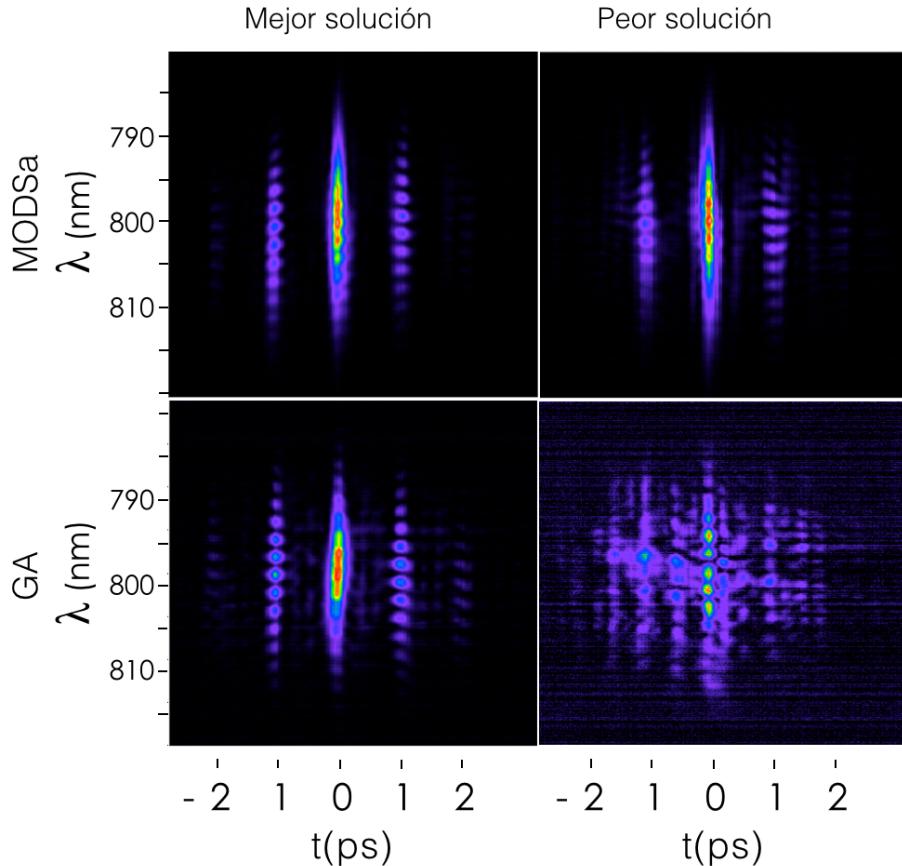


Figura 5.47: Trazas de *FROG* de la mejor y peor solución obtenida por *AG* y *MODS*. Las soluciones obtenidas por *MODSa* son de calidad comparable en todos los casos, mientras que el *AG* presenta una considerable dispersión de energía.

En el siguiente apartado haremos un análisis más profundo de la solución a la que

han llegado los algoritmos y veremos cómo, en realidad, dividir el pulso en dos subpulsos con la separación de 1ps no es, en realidad, la mejor solución para el problema.

### 5.5.2.b. Comportamiento de *MODS* frente a *AG* sobre el sintetizador 2

En estos experimentos se utiliza el sintetizador 2 (tabla 3.3.1) que nos ofrece una controlabilidad mejor que el usado en el anterior ejemplo. cómo mejora en el sistema de adquisición de la señal de birrefringencia hemos aprovechado que se ha sustituido el espectrómetro utilizado en FROG por un *Mightex* con una resoluciónpectral de 0.2 nm. Utilizamos su lectura como señal de feedback, en sustitución del fotodiodo lineal. Utilizamos el máximo del espectro registrado con un tiempo de adquisición de 100ms como medición de la birrefringencia. Esto nos permite mejorar el tiempo de adquisición de señal bajándolo hasta, aproximadamente, 500ms<sup>88</sup> por muestra.

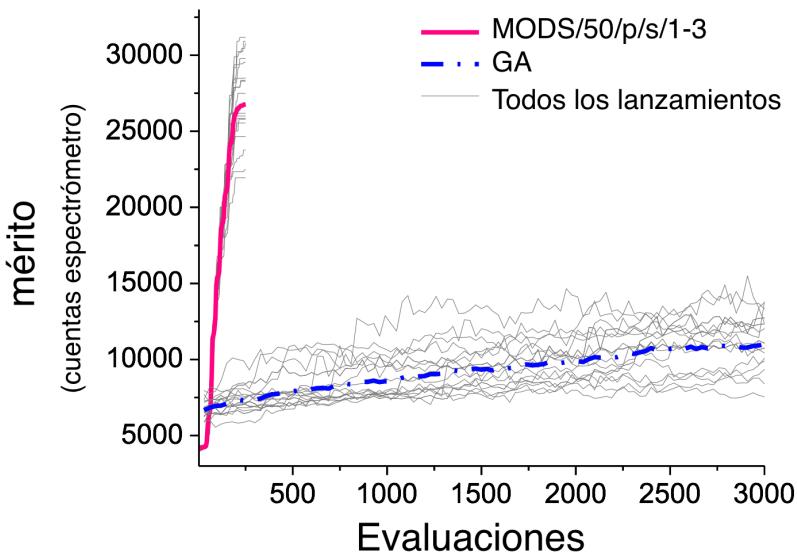


Figura 5.48: Curvas promedio de convergencia, junto con todas las curvas de convergencia obtenidas por *MODS* y *AG*.

Una diferencia fundamental existente frente a los lanzamientos que se han analizado en el anterior apartado, y con los que veremos en este es que estas pruebas se han realizado después de una ajuste completo del sistema. El sistema láser (oscilador y amplificador) se encuentran en un nivel óptimo de potencia y se ha realizado una alineación exhaustiva del pulse shaper. También se ha eliminado el *SSA* que estaba situado en la salida del amplificador y presente durante la obtención de los anteriores

<sup>88</sup>250 ms de estabilización del SLM + 100 ms de integración espectral + 150 ms de adquisición y procesado de datos

resultados. Cómo se ha descrito en el apartado 5.1.3 introducía oscilaciones de señal asociadas a la oscilación de la duración de pulso.

Todo ello nos ha permitido obtener unos mejores resultados.

El experimento se ha realizado utilizando 50 nodos de control y comparando el desarrollo de *MODS/50/p/s/1-3* (251 evaluaciones) frente al *AG* con la misma sintonización utilizada anteriormente: población de 30 individuos, elitismo de 2,  $pm=0.05$ ,  $pc=0.8$ , 6 bits población uniforme en el rango  $[0, 2\pi]$  y permitiéndole evolucionar durante 100 generaciones (3000 evaluaciones).

Hemos realizado 20 lanzamientos con cada uno de los algoritmos obteniendo el resultado promedio que se muestra en el Figura 5.48, junto con la evolución de todos los lanzamientos. Gracias a las buenas condiciones en las que se encontraba el sistema experimental *MODS* supera ampliamente el resultado conseguido por *AG*, tanto en tiempo de optimización como en valor de intensidad alcanzado.

En la Figura 5.49 se muestran las curvas de convergencia de *MODS*, su promedio y la intensidad espectral asociada, en función del pixel sobre el SLM en el que se están efectuando las optimizaciones marginales. Cómo hemos visto, el grado de optimización alcanzado depende de la intensidad espectral asociada.

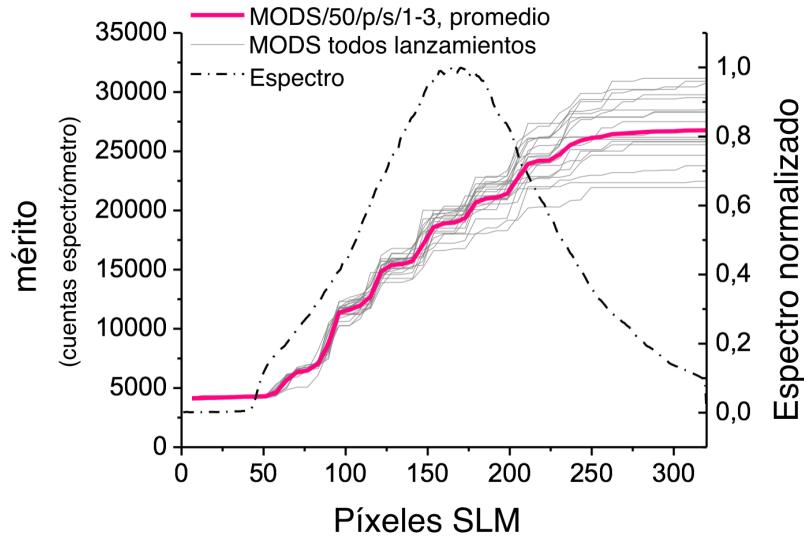


Figura 5.49: Curva promedio de convergencia de *MODS* junto con todas las evaluaciones realizadas. La evolución de la curva está relacionada con la energía espectral asociada a cada nodo.

En las trazas de *FROG* de las mejores y peores soluciones vemos, cómo era de esperar de las curvas de convergencia, que el resultado de *MODS* es claramente superior al obtenido por el *AG*. En este último incluso en la mejor solución, existe energía fuera del tiempo de autosuperposición. En la peor solución de *AG* podemos ver, al igual

que sucedía en los resultados mostrados en la Figura 5.47, energía depositada a intervalos de 500 fs. Esta situación genera la puerta Kerr con solapamiento temporal entre los trenes de pulsos, cada dos pulsos con 1ps de separación serán detectados, pero la eficiencia de la señal se ve seriamente comprometida por la ineficiente distribución de energía obtenida.

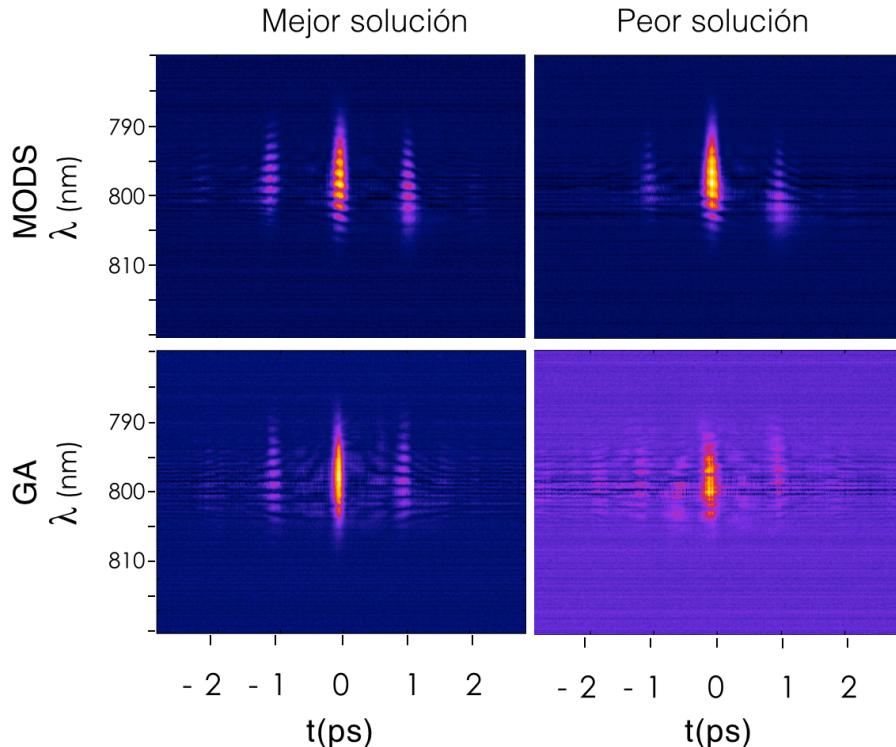


Figura 5.50: Trazas de *FROG* de la mejor y peor solución obtenida por el *AG* y *MODS*

En la toda la discusión previa relativa al la solución a este problema hemos partido de la intuición de que la mejor solución posible consiste en una pareja de pulsos por transformada, separados 1ps. Esto nos proporcionaría la máxima potencia de pico en solapamiento y, por tanto, la máxima señal de birrefringencia. Al analizar la solución intuitiva hemos de tener en cuenta que no es, de hecho, alcanzable mediante un sintetizador que utilice exclusivamente conformación de fase.

Para determinar la solución mas próxima a dos pulsos, lo mas cortos posibles, que podemos obtener mediante nuestro sintetizador, hemos usado el algoritmo de *GS*<sup>89</sup> para obtener la fase necesaria para conformar un doble pulso por transformada (100 fs cada uno), con una separación de 1ps. La fase ofrecida por *GS* puede verse en la

<sup>89</sup>Gerchberg-Saxton, una explicación detallada la pueden encontrar en el capítulo 5.2

Figura 5.51 (linea azul rayada) donde se compara con el mejor resultado de *MODS* (magenta). La Figura 5.52 muestra la conformación temporal ofrecida por *GS* y la que se obtiene al realizar la deconvolución de la traza de *FROG* de la mejor solución alcanzada por *MODS*.

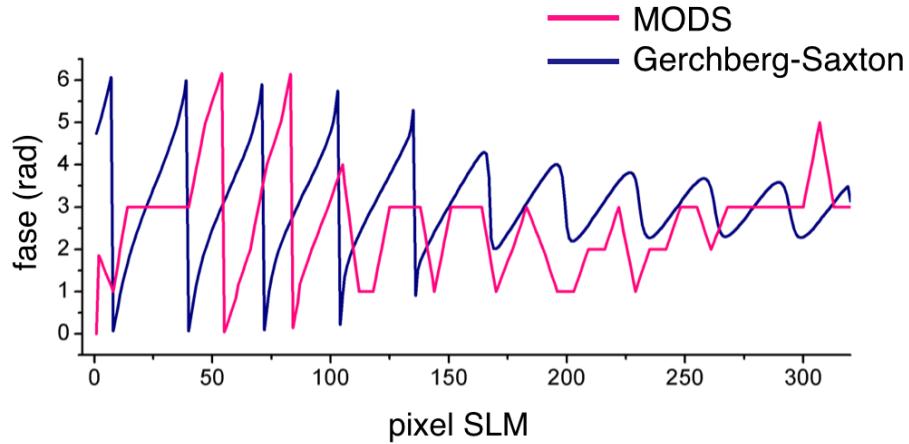


Figura 5.51: Fase teórica para un doble pulso obtenida por GS(azul) y fase obtenida experimentalmente por MODS(rosa)

Podemos ver cómo la solución temporal obtenida por ambos algoritmos no es un doble pulso: es un tren de pulsos. Al utilizar modulación de fase hemos visto cómo, por regla general, no existe una solución exacta al problema de la conformación de fases. En este caso parece que la mejor aproximación, al imponer que cada uno de los subpulsos tenga la menor duración posible, es un tren de pulsos asimétrico, con diversas intensidades relativas. La fase de *GS*, al igual que la de *MODS*, está compuesta por dos formas básicas: En la primera parte del espectro existe una componente lineal sobre la fase. Superpuesta y distribuida a lo largo de toda la fase también existe una componente sinusoidal amortiguada. La fase lineal genera la división del pulso en dos pulsos que no son por transformada [13] y la componente sinusoidal es una fase se utiliza comúnmente para la generación de trenes de pulsos [18]

La fase obtenida por *MODS* es ciertamente irregular, teniendo mayores desviaciones frente a la ofrecida por *GS* en las zonas en las que espectralmente no hay energía. Sin embargo, se reproduce con bastante fidelidad el resultado temporal de *GS*. Ambas soluciones (*MODS* y *GS*) muestran un tren de pulsos con una relación de intensidades, entre sus dos pulsos principales separados por 1ps de aproximadamente 1/0.6. Los subpulsos secundarios, con una separación de 1ps, también existen en la solución de *MODS*.

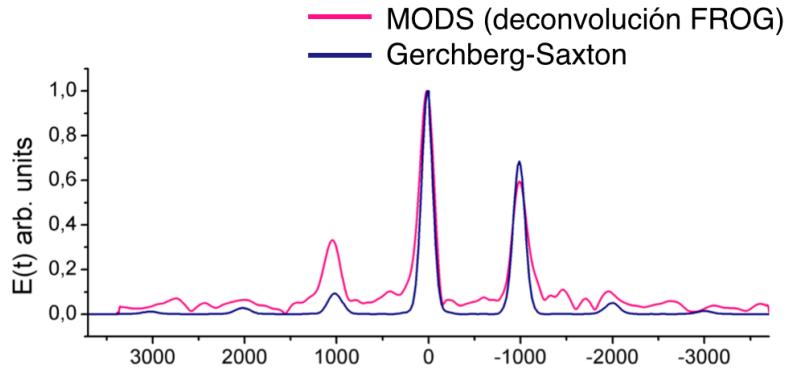


Figura 5.52: Aproximación temporal a un doble pulso con 1ps de separación obtenida por *GS* y solución experimental de *MODS*

### 5.5.2.c. Comportamiento de *MODS* frente a *DE* sobre el sintetizador 2

Se ha evaluado la respuesta de Differential Evolution (*DE*) sobre este problema y la hemos comparado con la conseguida por *MODS*. Por desgracia, en el momento de realizar los resultados experimentales de esta sección el sistema láser presentaba una caída de potencia hasta los 850 mW, frente al 1000 mW que debería ofrecer. En estas condiciones nuestra experiencia es que la optimización mediante *MODS* se ve comprometida, como veremos en los resultados

Utilizamos *DE* con una población de 10 individuos,  $F= 0.7$ ,  $C=0.7$ , probabilidad de aplicación de mutación trigonométrica,  $pm=0.05$ , se le deja evolucionar durante 2000 evaluaciones. *MODS* se configura como *MODS/50/p/s/1-3* (251 evaluaciones) partiendo de una fase plana  $=\pi$ . Se utiliza optimización de mérito.

En la Figura 5.53 se muestran las evaluaciones realizadas durante la optimización por ambos algoritmos durante 10 lanzamientos cada uno de ellos<sup>90</sup>. Las diez primeras curvas de convergencia corresponden a *DE* seguidos de las 10 correspondientes a *MODS*. *DE* estabiliza su convergencia en casi todos los lanzamientos, aunque los valores finales alcanzados son similares, su comportamiento a lo largo de las diferentes optimizaciones es bastante irregular. En algunos de ellos la población permanece muy dispersa, espacialmente en el segundo y décimo lanzamientos. Tanto en el segundo como en el séptimo lanzamiento podemos ver cómo la población se dispersa al final de la optimización. Esto es un claro indicador de la presencia de ruido en el sistema que hace que la evaluación de la población no sea efectiva. *MODS* presenta un comportamiento consistente en todos los lanzamientos, pero su valor alcanzado es ligeramente peor al conseguido por *DE*. La presencia del ruido podemos verla reflejada en el inicio

<sup>90</sup>Una pérdida de datos nos impide disponer de las curvas de optimización en un formato mas adecuado

de sus curvas de convergencia, pese a estar inicializado siempre desde la misma fase presenta muy diferentes valores de evaluación inicial.

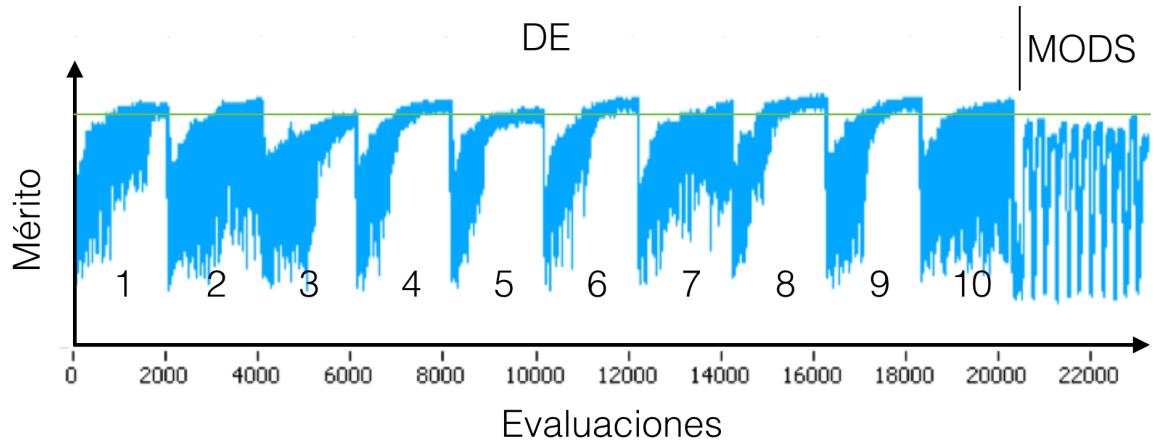


Figura 5.53: Convergencias *DE* y *MODS*. Podemos observar la diversidad en el comportamiento de *DE* en cada lanzamiento, sorprende la diferencia entre las dispersiones de población , cómo la observada entre el 4 y décimo lanzamiento.*MODS*, pese a partir de fase plana, presenta diferentes puntos de partida, debido al ruido existente en el sistema.

Las trazas de *FROG* de los mejores lanzamientos, Figura 5.54, nos muestran cómo *DE* y *MODS* generan distribuciones de energía con 1ps de separación. La principal diferencia es que *DE* genera un tren con mas subpulsos. En la figura se muestra también la señal temporal integrada, en la que se aprecia claramente cómo los pulsos conseguidos por *DE* son de menor duración que los obtenidos por *MODS*. Las trazas de *FROG* nos indican que *MODS* no puede alcanzar el mismo grado de ajuste que consiguió en los experimentos anteriores. Vemos energía distribuida entre los pulsos situados a 1 ps. El nivel de ruido ha impedido la distribución de esta energía en los tiempos adecuados. Este pobre resultado creemos que está relacionado a la inestabilidad del sistema experimental, que se ve reflejado en el ajuste de fases que se puede alcanzar.

*MODS* ofrece un resultado diferente al obtenido en las anteriores ocasiones. Si atendemos a las fases obtenidas, Figura 5.55 podemos ver cómo *MODS* sólo consigue ajustar las fases en la primera mitad del *SLM*, allí donde el salto de fase necesario es mayor y, probablemente, mas detectable su aportación temporal. Vimos cómo en el apartado anterior la fase óptima estaba compuesta por una componente lineal, encargada de dividir el pulso con la separación adecuada, y una sinusoidal, responsable de la generación del tren de pulsos y compresión de los mismos. Bajo las condiciones experimentales en las que se realizó el experimento no es posible realizar el ajuste de

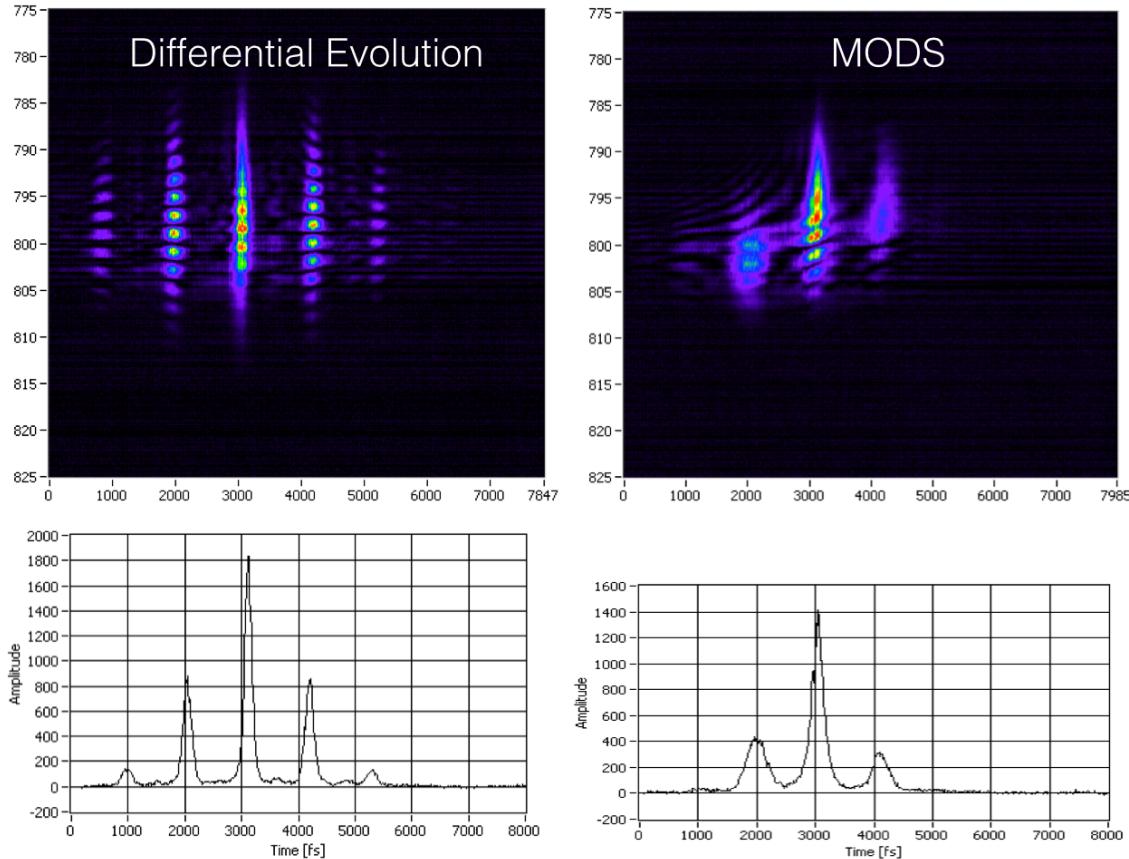


Figura 5.54: Trazas de *FROG* de las mejores soluciones alcanzadas por *DE* y *MODS*, así como sus intensidades temporales integradas

la componente sinusoidal.

En cambio, la fase conseguida por *DE* es aproximadamente sinusoidal con una cierta pendiente. Esta pendiente puede ser ignorada ya que sólo implica un desplazamiento temporal y no una modulación, pero es interesante comprobar cómo está constituida por fases entre 0 y  $\pi$  rad. En el apartado 5.1.2, página 91 se mostró cómo trabajar con fases situadas por encima de  $\pi$  rad podía introducir ruido en forma de modulación de amplitud.

*DE* presenta una mejor respuesta en este caso ya que su adaptación al ruido es superior a la de *MODS*. Para *MODS*, por su carácter determinista, el problema del ruido, tanto derivado de la modulación residual de amplitud como de fluctuaciones de señal es más crítico. Imposibilita la observación del efecto debido a la estructuración temporal y el ajuste de fase solo se produce en determinados puntos del espectro.

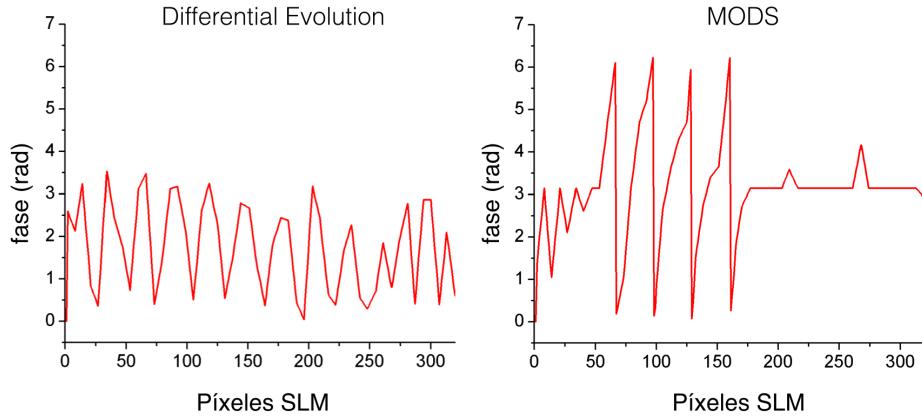


Figura 5.55: Fases obtenidas experimentalmente por *DE* y *MODS*. *DE* obtiene una fase esencialmente sinusoidal.

#### 5.5.2.d. Análisis del comportamiento de *MODS* frente al ruido

Para entender el comportamiento mostrado por *MODS* en el caso anterior hemos realizado una optimización computacional utilizando el esquema mostrado en la Figura 4.10, página 80, utilizando cómo observable  $\int |\tilde{E}(t)\tilde{E}(t - \tau)|^2 d\tau$ . El valor de dicha integral es proporcional a la señal que se detectaría debido a la birrefringencia. Este observable se optimiza utilizando *MODS/50/p/s/4-3-3*, 50 nodos con barrido secuencial, partiendo de una fase plana con valor  $\pi$ , mediante 4 barridos con 3 saltos de ajuste en cada uno.

Para emular las condiciones reales introducimos el ruido experimental como una variación de amplitud de un 10 % sobre la envolvente espectral, aplicada con una probabilidad uniforme. Las curvas de optimización seguidas por *MODS* con este ruido espectral (rojo) y sin él (negro) se muestran en la Figura 5.56. En la figura se han añadido también la estructura temporal de pulso y las fases obtenidas por *MODS* al finalizar cada uno de los barridos, su relación con los barridos está señalada con colores. En las curvas de optimización se han trazado todas las evaluaciones realizadas por el algoritmo.

En ausencia de ruido espectral la optimización observamos el comportamiento sigmoidal correspondiente al barrido secuencial, las fluctuaciones que se observan en la curva son debidas a las medidas de exploración realizadas en el ajuste de los nodos. Al principio y final de los barridos, colas espectrales, no se aprecian estas fluctuaciones<sup>91</sup> ya que no se dispone de energía. En cada uno de los barridos *MODS* utiliza un salto inicial de exploración menor ( $\sigma$ ), esto ocasiona que las fluctuaciones que vemos también sean menores a lo largo de los barridos. Se logra mejorar el mérito

<sup>91</sup>En realidad si existen pero su amplitud es mínima, no se aprecian en la imagen por la escala

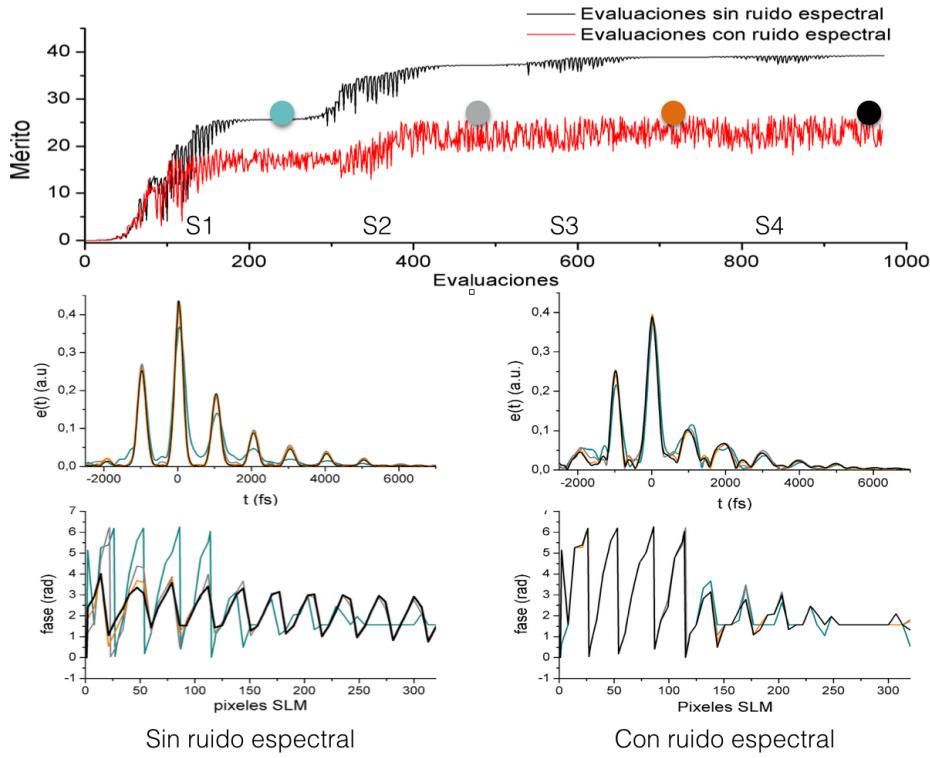


Figura 5.56: Resultados temporal y de fase obtenidos por *MODS* en simulaciones en el problema analizado, con y sin presencia de ruido en forma de modulación de amplitud espectral aleatoria de un 10 %. Ante la presencia de ruido la capacidad de toma de decisiones en la optimización marginal se anula y el algoritmo se detiene en una solución intermedia.

en todos los barridos.

Cuando introducimos ruido espectral la optimización se degenera. Se observa cómo el ruido afecta a la señal de mérito a lo largo de todos los nodos, independientemente de la energía espectral asociada. Ahora sólo conseguimos optimizar en los dos primeros barridos, con un rendimiento claramente inferior al conseguido sin el ruido espectral. En el tercer y cuarto barrido, los cambios que se producen en la exploración quedan dentro de la banda de ruido, las decisiones no se pueden tomar correctamente, y el camino hacia el óptimo global no se puede encontrar.

Si observamos el efecto sobre las fases y formas temporales obtenidas, vemos cómo el recorrido de fases obtiene, en el primer barrido y bajo ambas condiciones, una fase con conformación muy similar a la obtenida por GS en los resultados experimentales. Sin ruido espectral la solución se va refinando en los diversos barridos, obteniéndose la solución de función sinusoidal de fase, muy similar a la obtenida por *DE* en el experimento anterior. Con el ruido espectral introducido, la optimización se detiene en una

fase que divide el pulso de forma poco eficiente, haciendo imposible su refinamiento.

Las fases obtenidas durante el primer barrido son similares a las obtenidas en los experimentos realizados en el laboratorio, donde hemos tenido que utilizar *MODS* con un solo barrido, ya que en los barridos posteriores no lograba optimizar la fase de ningún nodo. La presencia de ruido lo hacia imposible y no era posible refinar la fase hasta su forma óptima, pero el camino seguido en la optimización era el correcto.

### 5.5.3. Conclusiones

Hemos realizado este experimento de *FROG desbalanceado* en la búsqueda de un problema de optimización que requiera como solución un pulso estructurado. En otras palabras, un pulso cuya solución óptima sea diferente a la del pulso mejor comprimido temporalmente. El pulso láser conformado debe interaccionar consigo mismo a través de dos caminos ópticos diferentes para conseguir maximizar la generación de efecto Kerr, un efecto no-lineal de tercer orden. La solución a este problema es diferente a obtener el pulso mas corto posible. En este caso la optimización debe conseguir distribuir la energía contenida en el pulso en paquetes con una separación temporal determinada por la diferencia de longitudes de los caminos ópticos. Ademas, existe la restricción derivada de la no existencia de modulación de amplitud.

El resultado de la optimización de *MODS* supera ampliamente al resultado ofrecido por el *AG*, presentando una mejor calidad de la solución final y una menor dispersión entre los distintos lanzamiento. Por su parte, *DE* presenta unos tiempos de convergencia mejores a los ofrecidos por *AG*. En la comparación *MODS-DE* podemos ver como las condiciones experimentales son extremadamente críticas en el caso de *MODS*. Aunque el sistema experimental es idéntico, las diferentes condiciones de ruido en las que se puede encontrar el sistema pueden hacer inaccesible la solución para *MODS*.

No obstante, aunque la presencia de ruido experimental afecta notablemente al rendimiento de *MODS*, comprobamos como sus bases algorítmicas son válidas en problemas que implican la autointerferencia del pulso. Cuando las condiciones experimentales de ruido son lo suficientemente bajas ofrece resultados altamente satisfactorios.



## 5.6. Visualización del espacio de soluciones

La topología del espacio de soluciones es una base fundamental de *MODS*. Partimos de la presunción de la existencia de un solo máximo/mínimo accesible a través de la optimización marginal. En esta sección mostramos el aspecto experimental que tiene el espacio de soluciones en el problema de *FROG desbalanceado* 5.5.

El espacio de soluciones es un hipercubo  $n$ -dimensional con una longitud de  $2\pi$  en cada una de las dimensiones. No podemos observarlo de forma completa, con lo que realizamos una visualización sobre tres dimensiones. Para ello utilizamos una fase compuesta por 25 nodos y exploramos el valor de costo que ofrecen las variaciones de los nodos centrales 13, 14 y 15 que denominamos  $\phi_a$ ,  $\phi_b$  y  $\phi_c$  respectivamente. Medimos el espacio de soluciones que conforman muestreando cada uno de ellos en 40 puntos de fase entre 0 y  $2\pi$ , 64000 muestras en total. El proceso de evaluación del espacio se encuentra representado en la Figura 5.57 en la que se ha representado la variación de estos tres nodos sobre 4 puntos (64 muestras en total), el nodo  $\phi_a$  se representa lineal por claridad de la figura. Cada posible valor de fase de uno de los nodos se evalúa frente todas las combinaciones posibles de los otros dos.

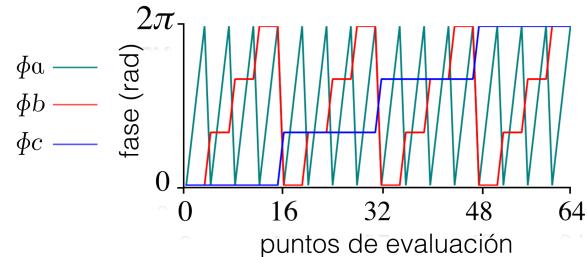


Figura 5.57: Representación de la secuencia de exploración de los valores de los nodos  $\phi_a$ ,  $\phi_b$  y  $\phi_c$  que se ha seguido para muestrear el espacio de soluciones. Reducción a 4 valores por nodo. Los valores de  $\phi_a$  no se muestran discretos por claridad de la imagen.

En la Figura 5.58 vemos el registro de señal experimental obtenido en la medición experimental, 40 puntos de fase para cada nodo nos proporcionan 64.000 puntos de evaluación. Se aprecia cómo el aspecto global es similar en toda la extensión de las medida, una sucesión de máximos y mínimos que presentando diferente comportamiento local. En general muestra una sucesión de curvas con un solo máximo y un solo mínimo cada 40 muestras, tal y como se esperaba que se comportara el espacio de búsqueda en el estimamos que *MODS* se desenvuelve (fig.2, página 73). Se observa cómo el máximo puede estar localizado en una cuenca muy aguda (fig.5.58.a) u ofrecer cierta planitud (fig.5.58.e), pero se mantiene la alternancia máximo-mínimo a lo

largo de todo el registro. La utilización del enrollado de fases introduce discontinuidades en ciertos puntos (fig.5.58.b,c), que se muestran evidentes a todas las escalas de visualización. Son saltos de valor de mérito brutos.

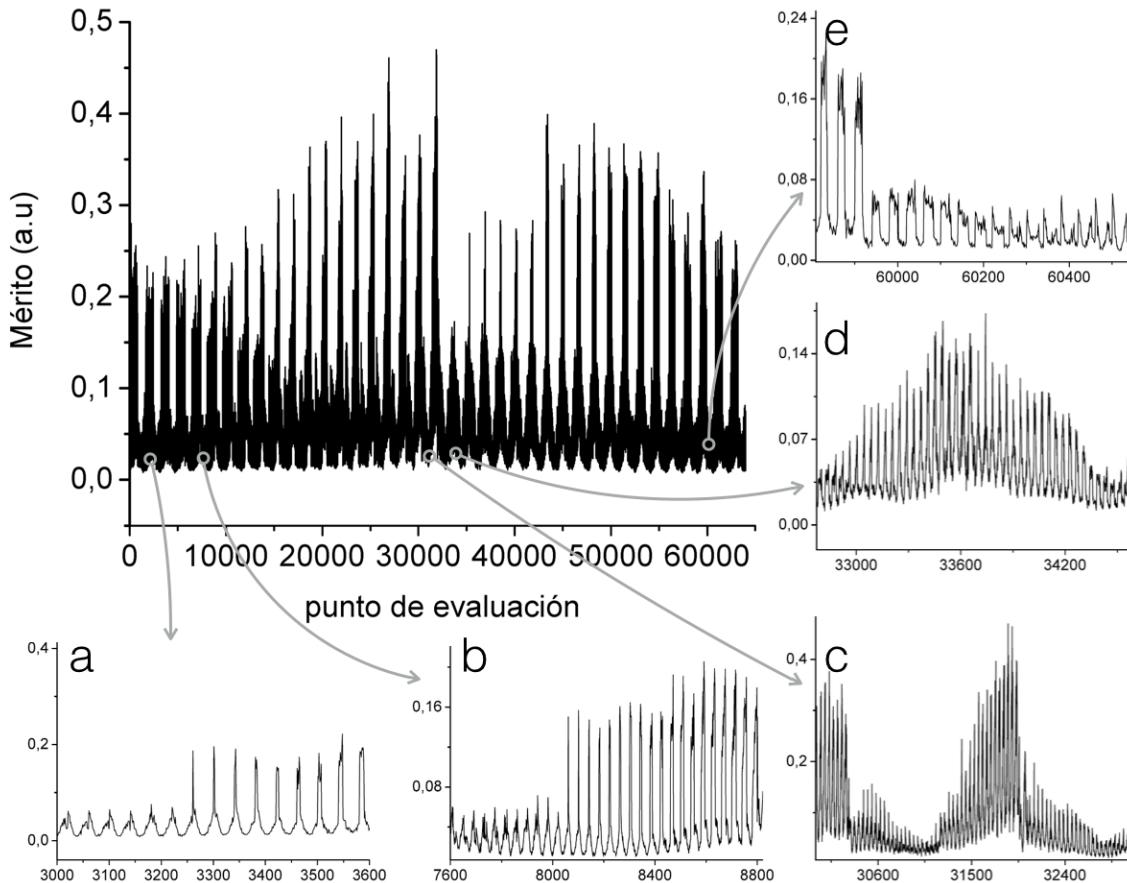


Figura 5.58: Registro de medición de los tres nodos a estudio con un muestreo de 40 puntos por nodo, 64000 muestras. Se puede observar cómo en toda la medida existe una sucesión de máximos y mínimo.

Para clarificar esta visualización en la Figura 5.59 se han distribuido estas 64.000 medidas en 40 imágenes de 40x40 píxeles, a los que se le ha aplicado una interpolación para suavizar la imagen. Cada uno de los ejes de las imágenes corresponden a la exploración de dos de los nodos ( $\phi_a, \phi_b$ ), entre cada imagen sucesiva se ha variado el tercer nodo ( $\phi_c$ ). Las líneas diagonales que se aprecian son producto de los saltos por enrollado de fases. Se puede apreciar cómo a medida que se modifica el valor del tercer nodo (cambio de imagen) el máximo (rojo) se desplaza gradualmente, presentando cierta continuidad y localización. Disponemos de un solo máximo en cada uno de los ejes.

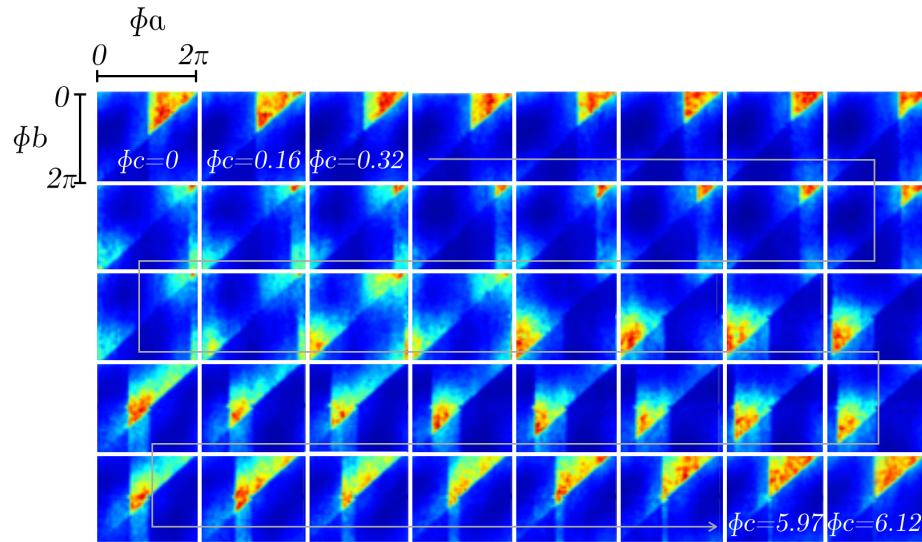


Figura 5.59: Mapas de soluciones correspondientes a la función de mérito en función de dos de los nodos. La evolución de las imágenes corresponde a la evolución del tercer nodo.

Para poder hacer una visualización completa del aspecto que presenta el cubo de datos que se ha muestreado, en la Figura 5.60 se ha compuesto un volumen a partir de las imágenes mostradas en la Figura 5.59. Cada una de las aristas de este cubo corresponde a uno de los nodos explorados, representados como  $\Phi_a, \Phi_b$  y  $\Phi_c$ . Ahora podemos apreciar cómo realmente las soluciones se agrupan. Para mejorar la visualización se ha aplicado transparencia permitiendo la visibilidad sólo de algunos valores de mérito. Vemos cómo los valores de mérito se agrupan formando superficies continuas. Realmente Existe (en general) un gradiente desde cualquier punto de este espacio que nos puede conducir al máximo. Se aprecia en la estructura 1D (fig 6solutionsScanVolumen), 2D (fig.5.59) y en la visión volumétrica que nos ofrece esta figura.

Las características tan particulares que predice la *QCT*, cómo es la multimodalidad de la solución la no existencia de trampas en el espacio se pueden apreciar. Esto es así aunque en el espacio que hemos explorado también está presente el problema geométrico de interferencia entre dos haces que presenta *FROG con desajuste temporal*.

Este espacio es dinámico, su conformación depende de las posiciones de fases de todos los nodos que conforman la fase. Por lo tanto se irá modificando a lo largo de la optimización de cada uno de los nodos, pero sus características topológicas generales se conservan, es lo que hace posible que *MODS* funcione.

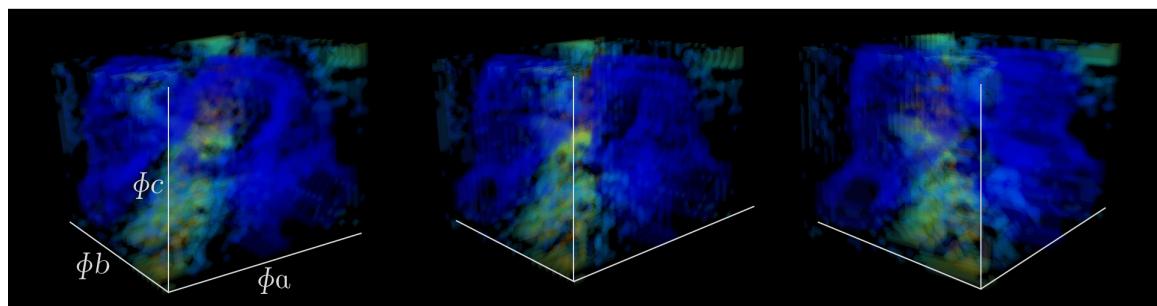


Figura 5.60: Visualización del espacio de soluciones realizado a partir de las muestras obtenidas del espacio definido por tres nodos  $\Phi_a, \Phi_b$  y  $\Phi_c$ . Se muestran el mismo espacio desde tres puntos de vista diferente

# Capítulo 6

## Conclusiones y desarrollo futuro

## 6.1. Conclusiones

El objetivo de esta tesis ha sido aplicar métodos de optimización a procesos de interacción no-lineales producto de la interacción de pulso ultracortos con materiales. Para ello se ha implementado un sintetizador de pulsos mediante manipulación de fase espectral y utilizado un sistema de control en bucle adaptativo.

El enfoque habitualmente utilizado en este tipo de problemas es la aplicación de un algoritmo evolutivo en el bucle adaptativo. Dichos algoritmos ofrecen buenas soluciones, pero a cambio necesitan un elevado número de evaluaciones, cifrado en miles o decenas de miles, para lograr la convergencia a la solución. Sin embargo, la naturaleza de determinados problemas exige, por limitaciones experimentales, la utilización de algoritmos de optimización eficientes que requieran un reducido número de evaluaciones de prueba. Bajo estas condiciones la utilización de la aproximación evolutiva puede ser inviable.

En el campo de los evolutivos se mostrado como Differential Evolution ofrece buenas propiedades de convergencia e inmunidad frente al ruido, presentandose como un algoritmo prometedor para este tipo de aplicaciones.

A lo largo de esta tesis se ha diseñado e implementado un algoritmo alternativo y novedoso para el control en bucle adaptativo en problemas de optimización de fenómeno ópticos no-lineales, que logra reducir el número de evaluaciones necesarias a solo unos centenares, aun utilizando un gran número de variables para el control de la fase. Dicho algoritmo, denominado *MODS*, utiliza características del espacio de control y de la topología del espacio de soluciones de los fenómenos implicados en la interacción no-lineal. El espacio de control nos permite utilizar optimización marginal, es decir, optimizar una a una las variables implicadas. La topología esperada del espacio de soluciones, basada en ideas derivadas de teoría de control cuántico, nos dice que el problema puede ser visto como un problema de gradiente. Si bien su comportamiento es crítico ante determinadas condiciones experimentales (ruido y modulación de amplitud), se han conseguido unos resultados extremadamente satisfactorios en todos los experimentos realizados.

Se ha mostrado la eficiencia y viabilidad de aplicación de *MODS* sobre una amplia muestra de fenómenos ópticos no-lineales. En sólidos se ha conseguido la optimización de absorción de dos fotones y birrefringencia inducida por efecto Kerr. Asimismo se ha demostrado su capacidad para resolver un problema geométrico que implica la optimización de efecto Kerr mediante el reparto de la energía del pulso en paquetes separados temporalmente. En la nano escala se ha mostrado la capacidad de optimizar generación de segundo armónico sobre nanopartículas y en fase gas se ha mostrado la viabilidad de su aplicación sobre fenómenos de alineamiento molecular.

El bajo número de evaluaciones que requiere *MODS* abre la puerta a su aplicación sobre experimentos destructivos, como puede ser el procesado por láser de materiales

en superficie y en volumen. En superficie se puede abordar la optimización de profundidad de cráter en pulso único o la maximización de contraste óptico. En volumen se podría optimizar las modificaciones de cambio de índice.

Los resultados obtenidos nos hacen pensar que *MODS* podría ser aplicable a multitud de procesos de control de fenómenos tanto físicos como químicos, como pueden ser la generación de altos armónicos, procesos de absorción multifotónica, transiciones de estados excitados de moléculas o reacciones de fotodisociación en gases.

## 6.2. Desarrollo Futuro

A continuación se plantean una serie de puntos que consideramos deberían explorarse en el desarrollo futuro de *MODS*.

- La utilización de densidades no uniformes de nodos en función de la energía espectral puede proporcionar una ventaja al poder centrar el esfuerzo de optimización en aquellas zonas donde la contribución energética es mayor.
- Explorar la utilización de diferentes densidades de nodos dependiendo del barrido en el que se encuentra la optimización. Comenzar así con un número reducido de nodos (que permiten un mayor manejo de energía) y proseguir con un número mayor. Esto puede permitir un mejor ajuste de la fase.
- El tamaño del salto inicial de exploración de nodo por barrido,  $\sigma$ , puede suponer diferencias en la calidad de la solución alcanzada y en la capacidad para enfrentarse al ruido. La utilización de diferentes esquemas de elección de  $\sigma$  debería ser explorada.
- Uso de un esquema combinado *MODS*-Evolutivo. *MODS* presentan una buena aceleración en la aproximación al óptimo, pero en condiciones de alto ruido no es capaz de realizar un ajuste final de la solución. La solución aportada por *MODS* puede ser utilizada como semilla de inicialización de población para un evolutivo, suponiendo el ahorro de unas miles de evaluaciones.
- Realizar la optimización marginal, ajuste de cada nodo, mediante un algoritmo evolutivo. Esta variante puede proporcionar robustez frente al ruido, pero a costa de incrementar el número de evaluaciones requeridas.
- En un principio la filosofía de optimización de *MODS* podría aplicarse a sistemas con modulación mediante amplitud y fase. Su utilización mediante optimización alternativa de modulación y fase alternativamente, a nivel de barrido o de nodo, debería explorarse.

# **Apéndice A**

## **Publicaciones asociadas**

## A.1. Publicaciones y Comunicaciones a Congresos Internacionales relacionadas con el desarrollo y utilización de Algoritmo “Multiple, one-dimensional search” (MODS)

### Publicaciones en revistas internacionales:

1. M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, and J. Solis, "Multiple One-Dimensional Search (MODS) algorithm for fast optimization of laser–matter interaction by phase-only fs-laser pulse shaping," *Appl. Phys. B* (2014). Publicado "online" el 18 de Enero de 2014. DOI: 10.1007/s00340-013-5757-y
2. M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, A. Ruiz de la Cruz, and J. Solis, "Optimization of ultra-fast interactions using laser pulse temporal shaping controlled by a deterministic algorithm," *Appl. Phys. A* 114, 477–484 (2013).
3. M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Siegel, L. Moreno and J. Solis, "Performance of Multiple One-Dimensional Search (MODS) versus Differential Evolution (DE) algorithms in the optimization of non-linear optical interactions controlled by a phase-only temporal pulse-shaping device", *J. Glob. Optim.* (to be submitted)
4. P.M. Roque, M. Galvan-Sosa, Nicolò Accanto ,Niek F. van Hulst "Maximizing the two photon absorption from a single quantum emitter", (to be submitted)

### Comunicaciones en Congresos Internacionales:

1. E-MRS, Spring Meeting Simposium: V, "Laser materials interactions for micro and nano applications" M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, J. Solis "Pre-determined step search versus Evolutionary algorithms in optimal control of fs-laser pulse shaping: searching with a waltz" (Oral) Estrasburgo, Francia, (Mayo 2013)
2. E-MRS, Spring Meeting Simposium: V, "Laser materials interactions for micro and nano applications" M. Galvan-Sosa, J. Siegel, L. Moreno, J. Solis "Mapping the solution landscape in "model" problems in fs-laser temporal shaping optimization" (Poster) Estrasburgo, Francia, (Mayo 2013)
3. EMRS'2012 Simposium: V, "Laser materials interactions for micro and nano applications" M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, J. Solis "Optimization of Two Photon Absorption Using Temporal

Shaping with a Non-evolutionary Algorithm” (Oral) Estrasburgo, Francia (Mayo 2012)

## **A.2. Publicaciones y Comunicaciones a Congresos Internacionales relacionadas con la utilización de técnicas de conformación temporal de pulsos ultracortos**

### **Publicaciones en revistas internacionales:**

1. D. Puerto, J. Siegel, W. Gawelda, M. Galvan-Sosa, L. Ehrentraut, J. Bonse and J. Solis “Dynamics of plasma formation, relaxation and topography modification induced by femtosecond laser pulses in crystalline and amorphous dielectrics” *J. Opt. Soc. Am. B* 27, 1065-76 (2010)
2. J. Hernandez-Rueda, D. Puerto, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, and J. Solis “Plasma Dynamics and Structural Modifications Induced by Femtosecond Laser Pulses in Quartz” *Appl.Surf.Sci.* 258, 9389– 9393, (2012)
3. J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, D. Puerto, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, and J. Solis “Ad-hoc design of temporally shaped fs laser pulses based on plasma dynamics for deep ablation in fused silica” *Appl.Phys.A* 112, 185-189 (2013) Published online 19/09/2012, <http://dx.doi.org/10.1007/s00339-012-7238-2>
4. J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, A. Ruiz de la Cruz, J. Solis “Surface structuring of fused silica with temporally shaped ultrashort laser pulses” *J. Opt. Soc. Am. B* 30, 1352-1356 (2013)
5. J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Garcia-Lechuga, A. Ruiz de la Cruz, M. Galvan-Sosa, J. Solis “Controlling ablation mechanisms in sapphire by irradiation with temporally shaped fs-laser pulses” (to be submitted)

### **Comunicaciones a Congresos Internacionales:**

1. 13th International Symposium on Laser Precision Microfabrication, LPM2012 J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, and J. Solis “Plasma dynamics during the ablation of fused silica with temporally shaped femtosecond pulses” (Oral) Washington, DC (EEUU) (Junio 2012)

2. EMRS'2012 Simposium: V, "Laser materials interactions for micro and nano applications" J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, J. Solis "Plasma dynamics during the ablation of silica with temporally shaped femtosecond pulses" (Oral) Estrasbrugo, Francia (Mayo 2012)

# Bibliografía

- [1] M. Wollenhaupt, L. Englert, A. Horn, and T. Baumert, “Temporal femtosecond pulse tailoring for nanoscale laser processing of wide-bandgap materials,” *Proceedings of SPIE*, vol. 7600, p. 76000X, 2010.
- [2] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, B. A. Richman, and D. J. Kane, “Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 68, no. 9, pp. 3277–3295, 1997.
- [3] O. Shir and T. Bäck, “The second harmonic generation case-study as a gateway for es to quantum control problems,” *Proceedings of the 9th annual conference on Genetic and evolutionary computation*, pp. 713–721, 2007.
- [4] N. Accanto, J. B. Nieder, L. Piatkowski, M. Castro-Lopez, F. Pastorelli, D. Brinks, and N. F. van Hulst, “Phase control of femtosecond pulses on the nanoscale using second harmonic nanoparticles,” *Light: Science & Applications*, vol. 3, p. e143, Jan. 2014.
- [5] N. Xu, J. Li, J. Li, Z. Zhang, and Q. Fan, “Polarization Detection of Molecular Alignment Using Femtosecond Laser Pulse,” in *Proceedings of the 2012 Second ...*, 2012.
- [6] A. Weiner, “Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 71, p. 1929, 2000.
- [7] T. Hornung, R. Meier, and R. de Vivie-Riedle, “Coherent control of the molecular four-wave-mixing response by phase and amplitude shaped pulses 10.1016/S0301-0104(01)00254-3 : Chemical Physics — ScienceDirect.com,” *Chemical Physics*, 2001.
- [8] R. Fanciulli, A. Weiner, M. Dignam, D. Meinhold, and K. Leo, “Coherent control of Bloch oscillations by means of optical pulse shaping,” *Physical Review B*, vol. 71, Apr. 2005.

- [9] J. Herek, W. Wohlleben, R. Cogdell, D. Zeidler, and M. Motzkus, “Quantum control of energy flow in light harvesting,” *Nature*, vol. 417, no. 6888, pp. 533–535, 2002.
- [10] R. S. Judson and H. Rabitz, “Teaching lasers to control molecules,” *Physical Review Letters*, vol. 68, pp. 1500–1503, 1992.
- [11] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses,” *Science*, vol. 282, no. 5390, p. 919, 1998.
- [12] L. Kurtz and R. de Vivie-Riedle, “Applying optimal control theory for elements of quantum computation in molecular systems 10.1016/S0009-2614(01)00748-5 : Chemical Physics Letters — ScienceDirect.com,” *Chemical Physics Letters*, 2001.
- [13] R. Stoian, M. Wollenhaupt, T. Baumert, and I. Hertel, “Temporal Pulse Tailoring in Ultrafast Laser Manufacturing Technologies,” *Laser Precision Microfabrication*, pp. 121–144, 2010.
- [14] L. Englert, B. Rethfeld, L. Haag, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, and T. Baumert, “Control of ionization processes in high band gap materials via tailored femtosecond pulses,” *Opt. Express*, vol. 15, p. 17855, 2007.
- [15] A. M. Weiner, “Ultrafast optical pulse shaping: A tutorial review,” *Optics Communications*, vol. 284, pp. 3669–3692, July 2011.
- [16] M. Wollenhaupt, M. Krug, J. Köhler, T. Bayer, C. Sarpe-Tudoran, and T. Baumert, “Photoelectron angular distributions from strong-field coherent electronic excitation,” *Applied Physics B*, vol. 95, pp. 245–259, Feb. 2009.
- [17] A. Rundquist, A. Efimov, and D. Reitze, “Pulse shaping with the Gerchberg-Saxton algorithm,” *JOSA B*, vol. 19, no. 10, pp. 2468–2478, 2002.
- [18] M. Wollenhaupt, A. Prækelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Bayer, and T. Baumert, “Femtosecond strong-field quantum control with sinusoidally phase-modulated pulses,” *Physical Review A*, vol. 73, p. 063409, June 2006.
- [19] J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, A. Ruiz de la Cruz, and J. Solís, “Surface structuring of fused silica with asymmetric femtosecond laser pulse bursts,” *JOSA B*, vol. 30, no. 5, p. 1352, 2013.
- [20] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback,” *Applied Physics B: Lasers and Optics*, vol. 65, no. 6, pp. 779–782, 1997.

- [21] D. Meshulach, D. Yelin, and Y. Silberberg, “Adaptive real-time femtosecond pulse shaping,” *JOSA B*, vol. 15, no. 5, pp. 1615–1619, 1998.
- [22] A. Jafarpour, J. Savolainen, R. Jong, J. Middag, D. Sprünken, P. Walle, D. Yang, and J. Herek, “Robust orthogonal parameterization of evolution strategy for adaptive laser pulse shaping,” *Optics Express*, vol. 17, no. 14, pp. 11986–12000, 2009.
- [23] J. Roslund and H. Rabitz, “Gradient algorithm applied to laboratory quantum control,” *Physical Review A*, vol. 79, May 2009.
- [24] F. G. Omenetto, B. P. Luce, and A. J. Taylor, “Genetic algorithm pulse shaping for optimum femtosecond propagation in optical fibers,” *JOSA B*, 1999.
- [25] U. Siegner, M. Haiml, J. Kunde, and U. Keller, “Adaptive pulse compression by two-photon absorption in semiconductors,” *Optics letters*, vol. 27, no. 5, pp. 315–317, 2002.
- [26] J. Prawiharjo, N. K. Daga, and R. Geng, “High fidelity femtosecond pulses from an ultrafast fiber laser system via adaptive amplitude and phase pre-shaping,” *Advanced Solid- . . . ,* 2009.
- [27] O. Shir, J. Kok, T. Bäck, and M. Vrakking, “Gaining Insights into Laser Pulse Shaping by Evolution Strategies,” *Bio-inspired Modeling of Cognitive Tasks*, pp. 467–477, 2007.
- [28] R. de Nalda, C. Horn, M. Wollenhaupt, M. Krug, L. Bañares, and T. Baumert, “Pulse shaping control of alignment dynamics in N<sub>2</sub>,” *Journal of Raman Spectroscopy*, vol. 38, no. 5, pp. 543–550, 2007.
- [29] C. Siedschlag, O. Shir, and T. Back, “Evolutionary Algorithms in the Optimization of Dynamic Molecular Alignment,” *Optics Communications*, pp. 511–518, May 2011.
- [30] M. Tsubouchi and T. Momose, “Rovibrational wave-packet manipulation using shaped midinfrared femtosecond pulses toward quantum computation: Optimization of pulse shape by a genetic algorithm,” *Physical Review A*, vol. 77, p. 052326, May 2008.
- [31] J. Vesterstrom and R. Thomsen, “A comparative study of differential evolution, particle swarm optimization, and evolutionary algorithms on numerical benchmark problems,” *Evolutionary computation*, 2004.

- [32] R. Storn and K. Price, “Differential evolution—a simple and efficient heuristic for global optimization over continuous spaces,” *Journal of global optimization*, vol. 11, no. 4, pp. 341–359, 1997.
- [33] P. French, “The generation of ultrashort laser pulses,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 58, p. 169, 1995.
- [34] U. Morgner, F. X. Kärtner, S. H. Cho, Y. Chen, and H. A. Haus, “Sub-two-cycle pulses from a Kerr-lens mode-locked Ti: sapphire laser,” *Optics ...*, 1999.
- [35] G. N. Gibson, B. E. Bouma, R. Klank, and F. Gibson, “Electro-optically cavity-dumped ultrashort-pulse Ti: sapphire oscillator,” *Optics letters*, 1996.
- [36] J. C. Diels and W. Rudolph, “Ultrashort laser pulse phenomena,” 2006.
- [37] A. Monmayrant, S. Weber, and B. Chatel, “A newcomer’s guide to ultrashort pulse shaping and characterization,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 43, p. 103001, May 2010.
- [38] R. Sutherland, *Handbook of nonlinear optics*. Optical Engineering, New York, NY: Dekker, 2003.
- [39] R. del Coso and J. Solis, “Relation between nonlinear refractive index and third-order susceptibility in absorbing media,” *JOSA B*, 2004.
- [40] C. Igel and M. Toussaint, “A no-free-lunch theorem for non-uniform distributions of target functions,” *Journal of Mathematical Modelling and Algorithms*, vol. 3, no. 4, pp. 313–322, 2004.
- [41] C. Gollub and R. de Vivie-Riedle, “Modified ant-colony-optimization algorithm as an alternative to genetic algorithms,” *Physical Review A*, vol. 79, p. 021401, Feb. 2009.
- [42] M. Roth, J. Roslund, and H. Rabitz, “Assessing and managing laser system stability for quantum control experiments,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 77, no. 8, p. 083107, 2006.
- [43] A. M. Weiner, “Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 71, no. 5, pp. 1929–1960, 2000.
- [44] A. M. Weiner, “Femtosecond Optical Pulse Shaping and Procesing,” *Pergamon*, pp. 1–77, Feb. 1995.

- [45] M. Wefers and K. Nelson, "Analysis of programmable ultrashort waveform generation using liquid-crystal spatial light modulators," *JOSA B*, vol. 12, no. 7, pp. 1343–1362, 1995.
- [46] A. M. Weiner and D. Leaird, "Generation of terahertz-rate trains of femtosecond pulses by phase-only filtering," *Optics letters*, 1990.
- [47] A. Efimov, C. Schaffer, and D. Reitze, "Programmable shaping of ultrabroad-bandwidth pulses from a Ti: sapphire laser," *JOSA B*, 1995.
- [48] J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, D. Puerto, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, and J. Solis, "Ad-hoc design of temporally shaped fs laser pulses based on plasma dynamics for deep ablation in fused silica," *Applied Physics A*, vol. 112, pp. 185–189, Sept. 2012.
- [49] A. Prækelt, M. Wollenhaupt, A. Assion, C. Horn, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, and T. Baumert, "Compact, robust, and flexible setup for femtosecond pulse shaping," *Review of Scientific Instruments*, vol. 74, no. 11, p. 4950, 2003.
- [50] M. Galvan-Sosa, J. Portilla, J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, L. Moreno, and J. Solis, "Multiple One-Dimensional Search (MODS) algorithm for fast optimization of laser–matter interaction by phase-only fs-laser pulse shaping," *Applied Physics B*, Jan. 2014.
- [51] T. Brixner and G. Gerber, "Femtosecond polarization pulse shaping," *Optics letters*, vol. 26, no. 8, pp. 557–559, 2001.
- [52] F. Frei, R. Bloch, and T. Feurer, "Influence of finite spatial resolution on single- and double-pass femtosecond pulse shapers," *Optics letters*, vol. 35, no. 23, pp. 4072–4074, 2010.
- [53] F. Frei, A. Galler, and T. Feurer, "Space-time coupling in femtosecond pulse shaping and its effects on coherent control," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 130, no. 3, p. 034302, 2009.
- [54] B. Sussman, R. Lausten, and A. Stolow, "Focusing of light following a 4-f pulse shaper: Considerations for quantum control," *Physical Review A*, vol. 77, p. 043416, Apr. 2008.
- [55] D. Brinks, R. Hildner, and F. Stefani, "Beating spatio-temporal coupling: implications for pulse shaping and coherent control experiments," *Optics Express*, 2011.

- [56] C. Iaconis and I. Walmsley, "Self-referencing spectral interferometry for measuring ultrashort optical pulses," *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, vol. 35, pp. 501–509, Apr. 1999.
- [57] P. O'shea, M. Kimmel, X. Gu, and R. Trebino, "Highly simplified device for ultrashort-pulse measurement," *Optics letters*, 2001.
- [58] B. Fornberg and J. Zuev, "The Runge phenomenon and spatially variable shape parameters in RBF interpolation," *Computers & Mathematics with Applications*, vol. 54, pp. 379–398, Aug. 2007.
- [59] C. Horn, M. Wollenhaupt, M. Krug, T. Baumert, R. de Nalda, and L. Bañares, "Adaptive control of molecular alignment," *Physical Review A*, vol. 73, Mar. 2006.
- [60] M. P. A. Branderhorst, P. Londero, P. Wasylczyk, C. Brif, R. L. Kosut, H. Rabitz, and I. Walmsley, "Coherent Control of Decoherence," *Science*, vol. 320, pp. 638–643, May 2008.
- [61] M. Melanie, "An introduction to genetic algorithms," *Cambridge*, 1999.
- [62] R. L. Haupt and S. E. Haupt, *Practical Genetic Algorithms*. Newark, NJ: Wiley, 2004.
- [63] Holland, "AdaptatioAdaptation in natural and artificial systems: An introductory analysis with applications to biology, control, and artificial intelligence.n in natural and artificial systems: An introductory analysis with applications to biology, control, and artificial intelligence..," *U Michigan Press.*, May 1975.
- [64] A. E. Eiben, E. H. L. Aarts, and K. M. Van Hee, "Global convergence of genetic algorithms: A markov chain analysis," *Parallel Problem Solving from Nature*, vol. 496, pp. 3–12, June 1991.
- [65] R. Facciulli, L. Willmes, J. Savolainen, P. van der Walle, T. Bäck, and J. Herrek, "Evolution strategies for laser pulse compression," *Proceedings of the Evolution artificielle, 8th international conference on Artificial evolution*, pp. 219–230, 2007.
- [66] R. Storn and K. Price, "Differential evolution—a simple and efficient heuristic for global optimization over continuous spaces," *Journal of global optimization*, vol. 11, no. 4, pp. 341–359, 1997.
- [67] T. Tušar and B. Filipič, "Differential evolution versus genetic algorithms in multiobjective optimization," *Evolutionary Multi-Criterion Optimization*, pp. 257–271, 2007.

- [68] K. Price, R. M. Storn, and J. A. Lampinen, “Differential evolution a practical approach to global optimization,” 2005.
- [69] H. Fan and J. Lampinen, “A trigonometric mutation operation to differential evolution,” *Journal of global optimization*, vol. 27, no. 1, pp. 105–129, 2003.
- [70] R. de Nalda, C. Horn, M. Wollenhaupt, M. Krug, L. Bañares, and T. Baumert, “Pulse shaping control of alignment dynamics in N<sub>2</sub>,” *Journal of Raman Spectroscopy*, vol. 38, no. 5, pp. 543–550, 2007.
- [71] T.-S. Ho and H. Rabitz, “Why do effective quantum controls appear easy to find?,” *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, vol. 180, pp. 226–240, June 2006.
- [72] H. A. Rabitz, “Quantum Optimally Controlled Transition Landscapes,” *Science*, vol. 303, pp. 1998–2001, Mar. 2004.
- [73] W. Zhu and H. Rabitz, “Attaining optimal controls for manipulating quantum systems,” *International journal of quantum chemistry*, vol. 93, no. 2, pp. 50–58, 2003.
- [74] O. Shir, “Niching in Derandomized Evolution Strategies and its Applications in Quantum Control,” pp. 1–256, Feb. 2012.
- [75] Y. C. Ho, R. S. Sreenivas, and P. Vakili, “Ordinal optimization of DEDS,” *Discrete event dynamic systems*, 1992.
- [76] J. Kunde, B. Baumann, S. Arlt, F. Morier-Genoud, U. Siegner, and U. Keller, “Adaptive feedback control of ultrafast semiconductor nonlinearities,” *Applied Physics Letters*, vol. 77, no. 7, p. 924, 2000.
- [77] M. Hacker, G. Stobrawa, and T. Feurer, “Iterative Fourier transform algorithm for phase-only pulse shaping,” *Optics Express*, vol. 9, no. 4, pp. 191–199, 2001.
- [78] A. M. Weiner, S. Leaird, D. Leaird, and D. Reitze, “Shaping of femtosecond pulses using phase-only filters designed by simulated annealing,” *Optical Society of America*, vol. 10, pp. 1112–1120, May 1993.
- [79] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon, “Negative dispersion using pairs of prisms,” *Optics letters*, 1984.
- [80] J. Collier, C. Hernandez-Gomez, R. Allott, C. Danson, and A. Hall, “A single-shot third-order autocorrelator for pulse contrast and pulse shape measurements,” *Laser and particle beams*, vol. 19, no. 02, pp. 231–235, 2001.

- [81] A. COUAIRON and A. MYSYROWICZ, “Femtosecond filamentation in transparent media,” *Physics Reports*, vol. 441, pp. 47–189, Mar. 2007.
- [82] O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, and C. Y. Chien, “Conical emission from laser plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air,” *Optics ...*, 1997.
- [83] A. Brodeur and S. L. Chin, “Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media,” *JOSA B*, vol. 16, no. 4, pp. 637–650, 1999.
- [84] E. Hecht and A. Zajac, *Optics; 3rd ed.* Reading, MA: Addison-Wesley, 1998.
- [85] L. Le Xuan, C. Zhou, A. Slablab, D. Chauvat, C. Tard, S. Perruchas, T. Gacoin, P. Villeval, and J.-F. Roch, “Photostable Second-Harmonic Generation from a Single KTiOPO<sub>4</sub>Nanocrystal for Nonlinear Microscopy,” *Small*, vol. 4, pp. 1332–1336, Sept. 2008.
- [86] R. Hildner, D. Brinks, F. D. Stefani, and N. F. van Hulst, “Electronic coherences and vibrational wave-packets in single molecules studied with femtosecond phase-controlled spectroscopy,” *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 13, no. 5, p. 1888, 2011.
- [87] D. Brinks, R. Hildner, F. D. Stefani, and N. F. van Hulst, “Coherent control of single molecules at room temperature,” *Faraday Discussions*, vol. 153, p. 51, 2011.
- [88] J. R. Lakowicz, “Topics in Fluorescence Spectroscopy: Volume 5: Nonlinear and Two-Photon-Induced Fluorescence,” 1994.
- [89] B. Friedrich and D. Herschbach, “Polarization of molecules induced by intense nonresonant laser fields,” *The Journal of Physical Chemistry*, 1995.
- [90] F. Rosca-Pruna and M. Vrakking, “Experimental Observation of Revival Structures in Picosecond Laser-Induced Alignment of I<sub>2</sub>,” *Physical Review Letters*, vol. 87, p. 153902, Sept. 2001.
- [91] F. Xue, “MULTI-OBJECTIVE DIFFERENTIAL EVOLUTION: THEORY AND APPLICATIONS,” *Rensselaer Polytechnic Institute*, pp. 1–159, Sept. 2004.
- [92] N. Xu, J. Li, J. Li, Z. Zhang, and Q. Fan, “Polarization Detection of Molecular Alignment Using Femtosecond Laser Pulse,” in *Proceedings of the 2012 Second ...*, 2012.

- [93] E. Hertz, A. Rouzée, S. Guérin, B. Lavorel, and O. Faucher, “Optimization of field-free molecular alignment by phase-shaped laser pulses,” *Physical Review A*, vol. 75, p. 031403, Mar. 2007.
- [94] T. Suzuki, Y. Sugawara, S. Minemoto, and H. Sakai, “Optimal Control of Nonadiabatic Alignment of Rotationally Cold N<sub>2</sub> Molecules with the Feedback of Degree of Alignment,” *Physical Review Letters*, vol. 100, p. 033603, Jan. 2008.
- [95] V. Renard, M. Renard, S. Guérin, Y. Pashayan, B. Lavorel, O. Faucher, and H. Jauslin, “Postpulse Molecular Alignment Measured by a Weak Field Polarization Technique,” *Physical Review Letters*, vol. 90, p. 153601, Apr. 2003.
- [96] V. Loriot, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel, “Measurement of high order Kerr refractive index of major air components: erratum,” *Optics Express*, vol. 18, no. 3, pp. 3011–3012, 2010.