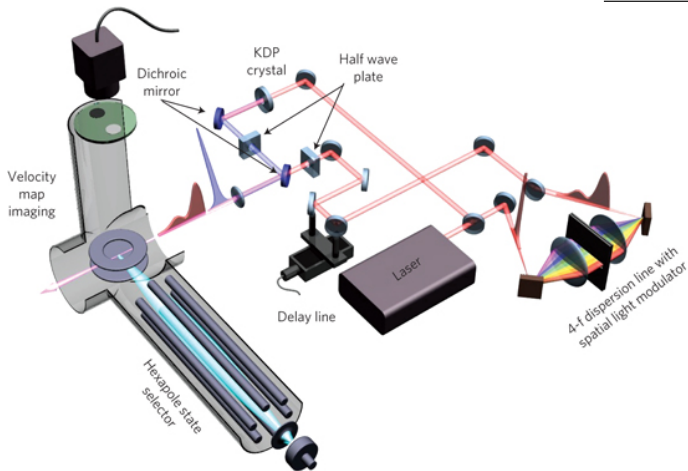


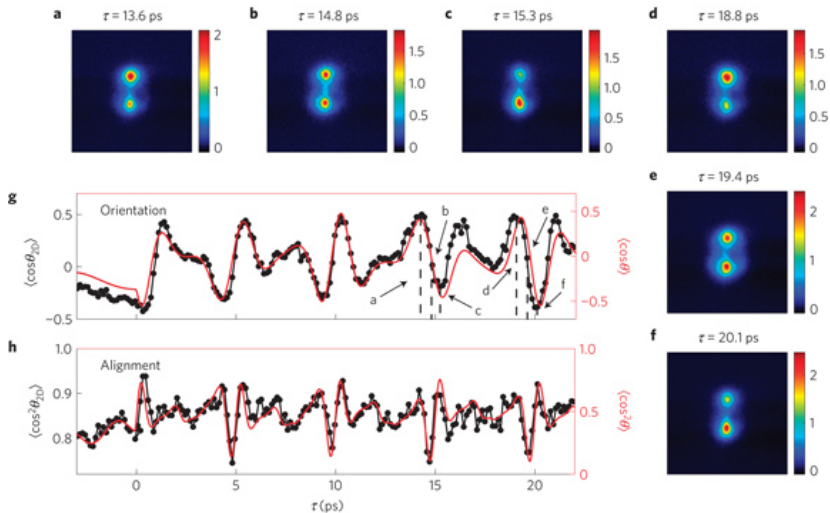
# Dynamische Orientierung von NO-Molekülen

- Kombination Trägergas,  $|JM\rangle$ -Selektion, dc-Feld und Pulsformung

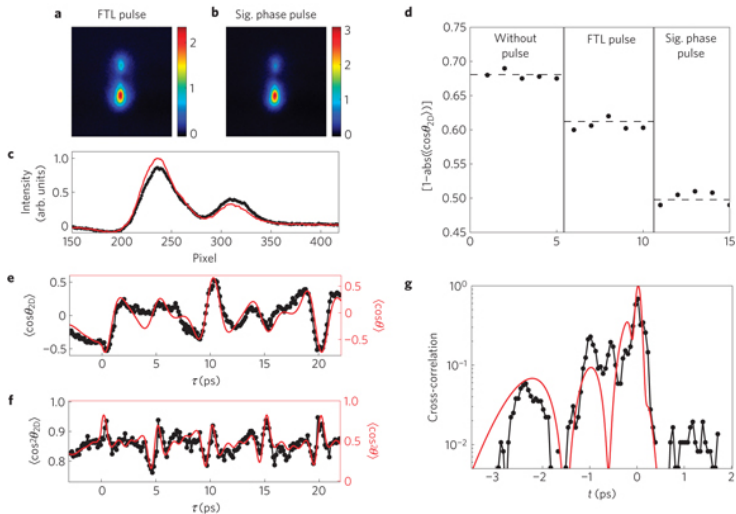


Nature Physics 5, 289 (2009)

## Dynamische Orientierung von NO-Molekülen

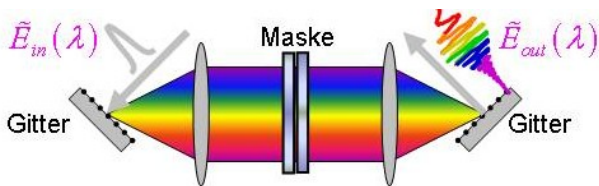


## Dynamische Orientierung von NO-Molekülen



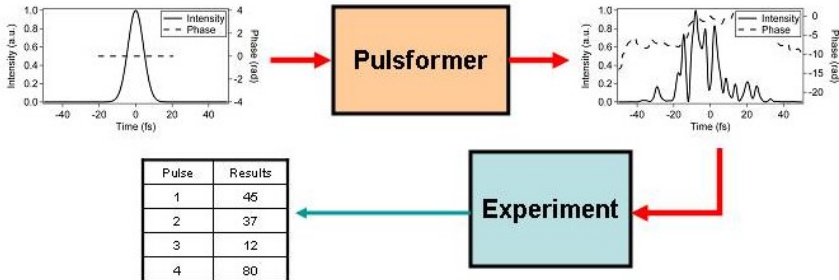
# Pulsformung und Kohärente Kontrolle

- Vorlesung basiert auf Material von Prof. Rick Trebino (Georgia Institute of Technology, School of Physics)  
<http://www.physics.gatech.edu/gcuo/lectures/index.html>
- Was bedeutet Pulsformung und was kann man damit anfangen?
- Wie funktioniert das?
  - (a) Räumliche Lichtmodulatoren (SLM)
  - (b) Akusto-optische Modulatoren (AOM)
  - (c) Deformierbare Spiegel
- Phasen- und Amplitudenvariation
- Adaptive Pulsformung unter Verwendung genetischer Algorithmen



# Pulsformung und Kohärente Kontrolle

- Pulsformung wirkt auf (spektrale) Amplitude, Phase oder Polarisation
  - Erzeugung Fourier-limitierter Pulse (Pulskompression)
  - Kontrolle chemischer Reaktionen oder anderer Phänomene
  - Vorkompensation der Verbreiterung von dispersiven Elementen
- Pulsformung sollte kontrolliert und reproduzierbar sein
- Pulsformung ändert das experimentelle Ergebnis



# Pulsformung

- Wie formen (modulieren) wir einen ultrakurzen fs-Puls ?
- Vielleicht direkt in der Zeitdomäne?

$$E_{out}(t) = h(t) \cdot E_{in}(t) \quad (1)$$

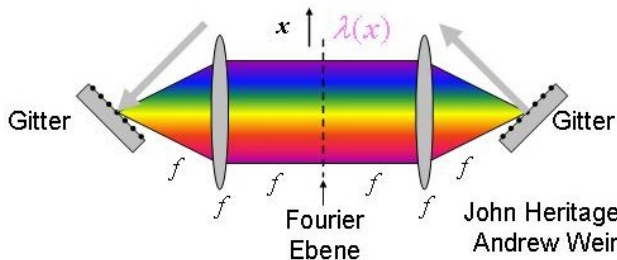
- Geht nicht - Modulatoren sind leider viel zu langsam !
- Alternativ können wir das Spektrum Modulieren (siehe Fourier-Transformation)

$$E_{out}(\omega) = H(\omega) \cdot E_{in}(\omega) \quad (2)$$

- Alles was zu tun ist, ist den Puls zu räumlich spektral zu zerlegen und Spektrum sowie spektrale Phase durch räumlich Variation der Transmission und Phasenverzögerung zu ändern  
Informationen: Rev. Sci. Instrum. 71, 1929 (2000)  
Interaktiv: <http://www.physik.uni-wuerzburg.de/femto-welt>

# Pulsformung

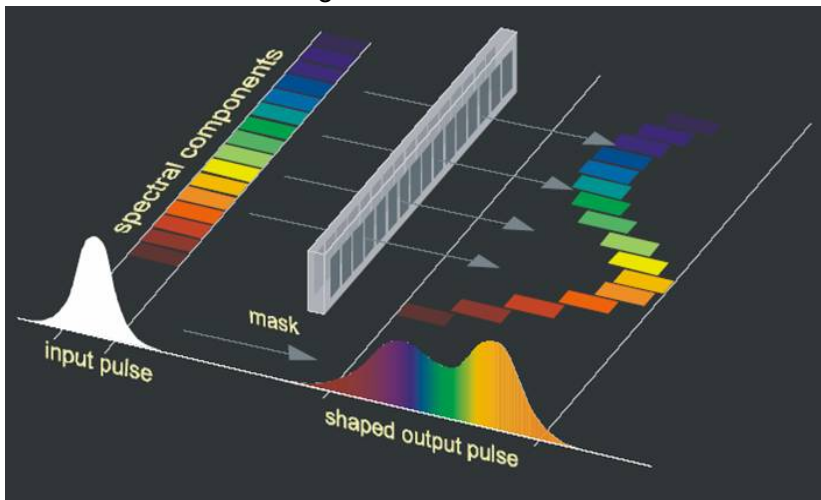
- Null-Dispersions-Kompressor in 4f-Geometrie



- Das erste Gitter zerlegt den Puls spektral (Farbe  $\rightarrow$  Winkel)
- Die erste Linse bildet Winkel (Wellenlänge) auf Position ab
- Das zweite Linsen-Gitterpaar macht die räumlich-zeitliche Verzerrung rückgängig
- Der Trick ist, Maske in der Fourier-Ebene zu positionieren

# Pulsformung

- Eine Phasenmaske verzögert selektiv verschiedene Farben

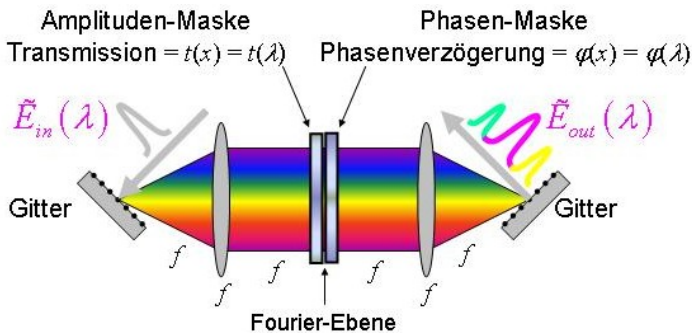


- Eine Amplitudenmaske formt das Spektrum



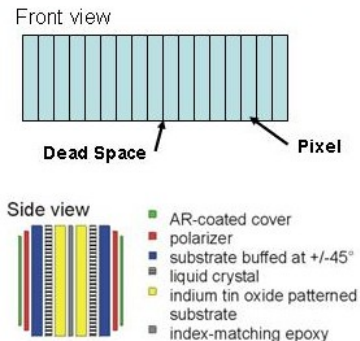
# Pulsformung

- Wir können simultan spektrale Amplitude und Phase kontrollieren
- Jede beliebige Pulsform kann mit den beiden Masken eines räumlichen Lichtmodulators erzeugt werden



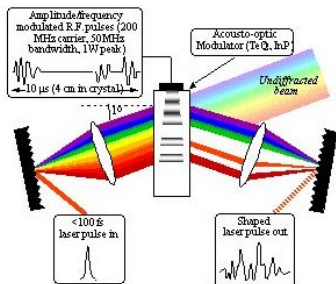
$$H(\lambda) = t(\lambda) \cdot \exp[i\varphi(\lambda)] \quad (3)$$

# Pulsformung mit Flüssigkristall-Modulatoren (LCM)



- Orientierung der Flüssigkristalle entlang eines dc-Feldes
- Phasenverzögerung hängt von  $V(x)$  bzw.  $V(\lambda)$  ab
- LCM besteht aus 2 Flüssigkristall-Reihen für entgegengesetzte Drehung der Polarisation
- Drehung um den gleichen Betrag  
→ Phasenmodulation
- Drehung um unterschiedliche Beträge  
→ Amplituden+Phasenmodulation

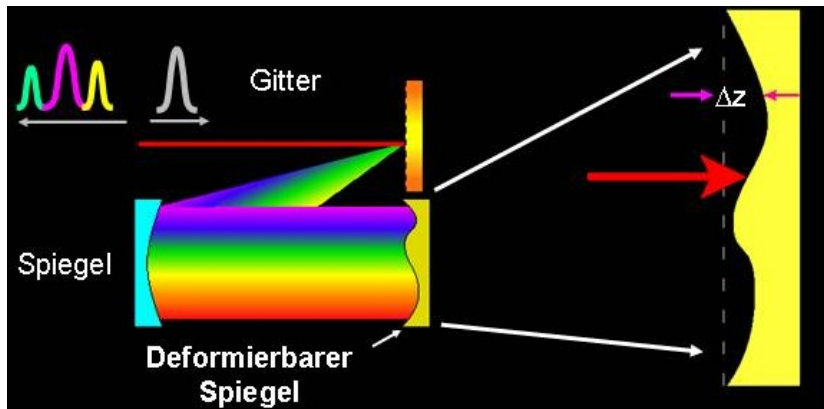
# Pulsformung mit Akusto-optischen Modulatoren (AOM)



Quelle: W. S. Warren et al., Princeton Universität

- Ablenkung durch Beugung an einem optischen Gitter (Dichtemodulation einer den Kristall durchlaufenden Schallwelle)
- Ortsabhängige Dichtemodulation  $\rightarrow$  Ortsabhängige Modulation des Brechungsindex
- Phasenverzögerung und Amplitude hängen von Phase und Amplitude der Schallwelle ab
- Geringe Effizienz da beugungsbasiert

## Pulsformung mit deformierbarem Spiegel



- Modulation der Phase, nicht der Amplitude

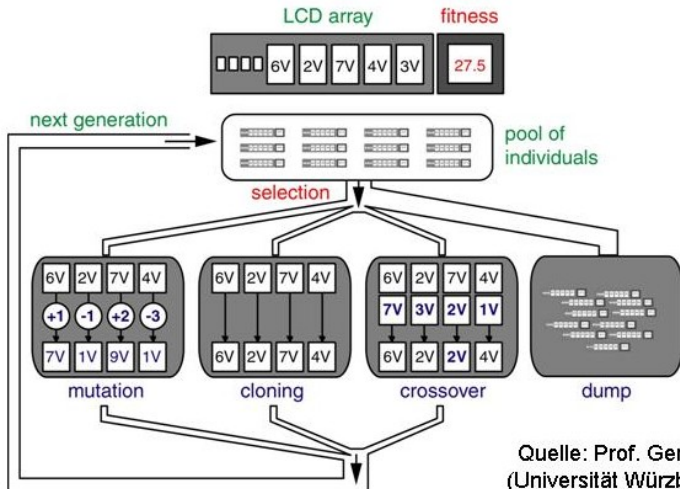
$$\Delta\varphi(x) = 2\frac{2\pi}{\lambda}\Delta z(x) \quad (4)$$

# Techniken zur Pulsformung: Vorteile und Nachteile

- Flüssigkristall-Modulatoren (LCM)
  - Amplituden-und Phasenmodulation
  - Pixel mit "toten" Bereichen
  - Effizient
- Akusto-optische Modulatoren (AOM)
  - Amplituden-und Phasenmodulation
  - kleine Pixel ohne "tote" Bereiche
  - Ineffizient
- Deformierbare Spiegel
  - Nur Phasenmodulation
  - große Pixel
    - ohne "tote" Bereiche (Membrane)
    - mit "toten" Bereichen (Mikro-Electro-Mechanische Systeme, MEMS)
  - Effizient

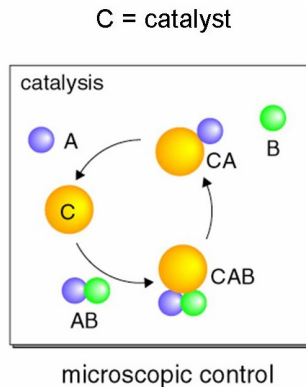
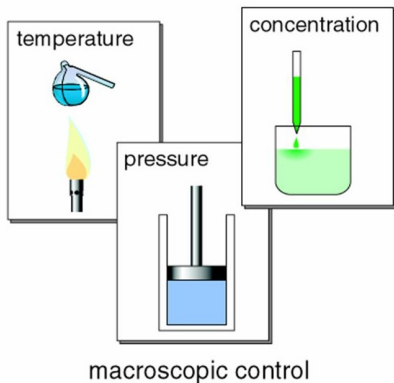
# Adaptive Pulsformung mittels genetischer Algorithmen

- Kreuzung, Mutation und Selektion im Evolutionsprozess



Quelle: Prof. Gerber  
(Universität Würzburg)

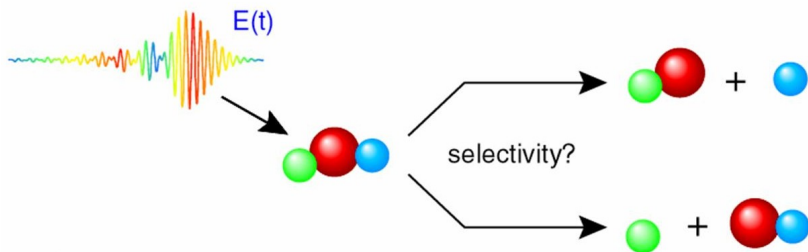
# Konventionelle Methoden chemischer Kontrolle



- Viele Prozesse lassen sich so steuern, aber nicht alle !

# Kohärente Kontrolle chemischer Reaktionen

- Können geformte fs-Pulse gezielt Bindungen brechen indem spezielle Wellenpakete auf der komplexen Potentiallandschaft geformt werden?



electric control field  $E(t)$ :

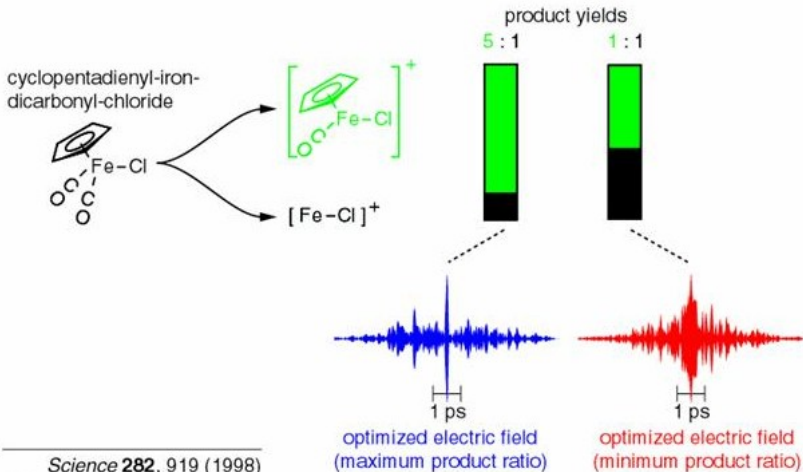
which one to use?  
how to generate it?





# Kohärente Kontrolle chemischer Reaktionen

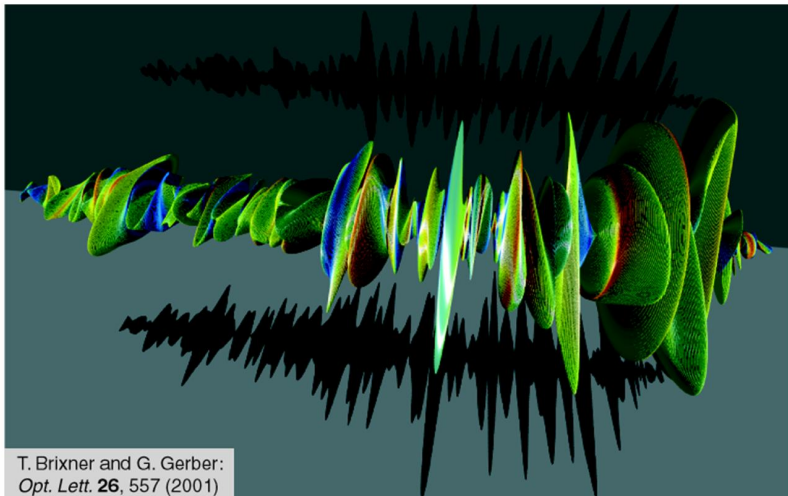
- ...aber die optimalen Pulsformen sind in der Regel sehr komplex...!



*Science* **282**, 919 (1998)  
*Chem. Phys.* **267**, 241 (2001)

# Kohärente Kontrolle chemischer Reaktionen

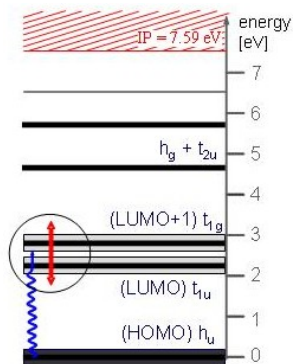
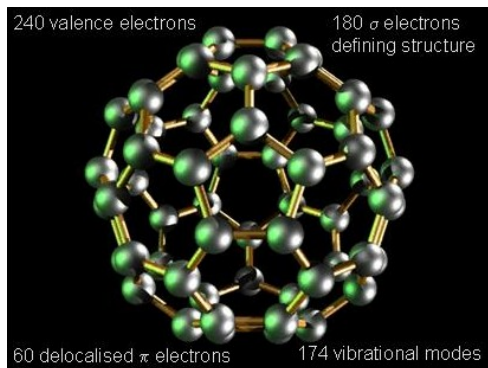
- ...insbesondere wenn nicht nur Amplitude und Phase sondern auch noch die Polarisation des Laserpulses manipuliert wird!



T. Brixner and G. Gerber:  
*Opt. Lett.* **26**, 557 (2001)

# Kontrolle der Photophysik in kleinen Quantensystemen

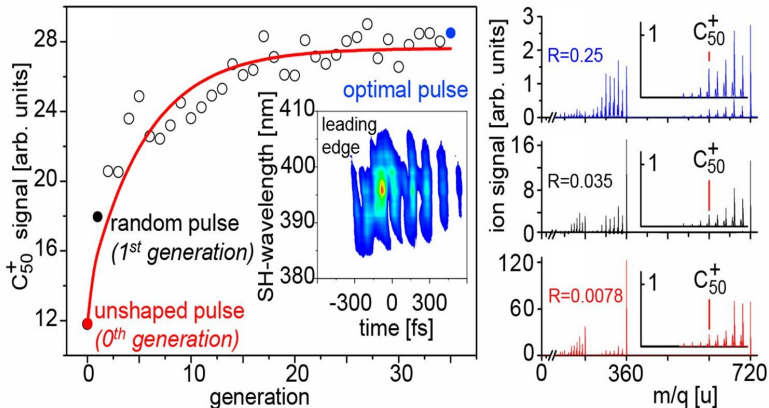
- Energieabsorption und Fragmentation in  $C_{60}$ -Fullerenen



- Resonante Anregung (HOMO  $\rightarrow$  LUMO+1) mit 400nm fs-Puls
- Beobachtung der Schwingungsdynamik im angeregten Zustand mittels adaptiver Pulsformung und Pump-Probe Spektroskopie

# Kontrolle der Photophysik in kleinen Quantensystemen

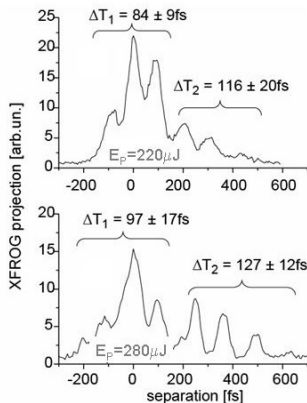
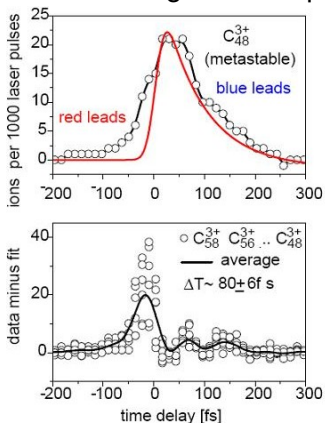
- Optimierung von  $C_{50}^+$  zielt auf maximalen Energieeintrag (vibronisch), da  $C_2$ -Abdampfung ein dominanter "Kühlprozess" ist



- Optimale Pulsform ist "Fingerabdruck" der induzierten Dynamik

# Kontrolle der Photophysik in kleinen Quantensystemen

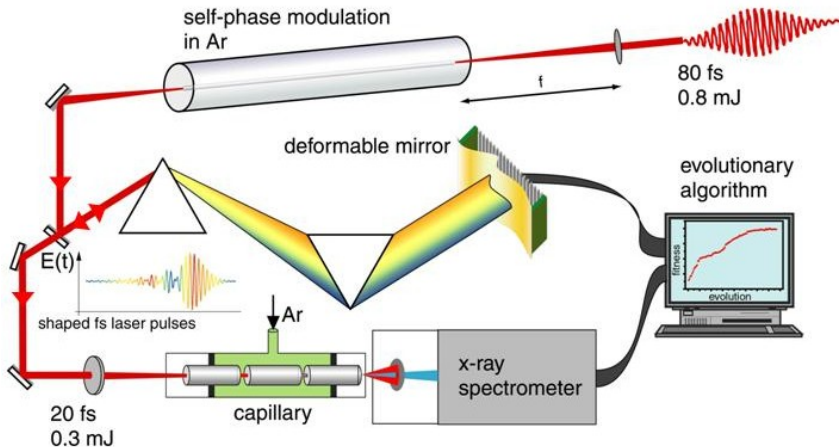
## • Vergleich Pulsformung und Pump-Probe Spektroskopie



- Pulsformung gibt zusätzliche Informationen:
  - (a) Schwingungsperiode im neutralen System und im Kation
  - (b) Mehrelektronenanregung

# Kontrolle nichtlinearer Prozesse

- Pulsformung optimiert selektiv Erzeugung hoher Harmonischer



Quelle: T. Pfeifer, MPI-Kernphysik, Heidelberg

# Kontrolle nichtlinearer Prozesse

- Pulsformung optimiert selektiv Erzeugung hoher Harmonischer

