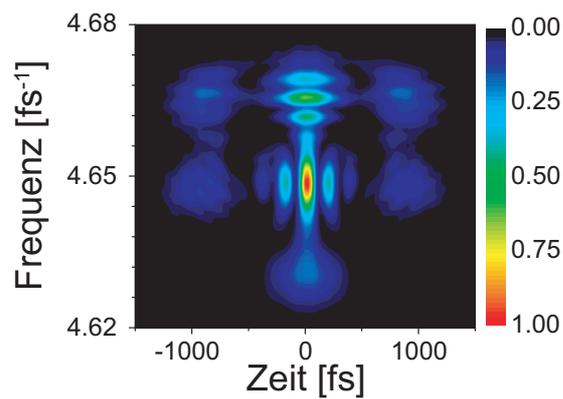


Quantenkontrolle im Zeit-Frequenz-Phasenraum



Dissertation zur Erlangung des
naturwissenschaftlichen Doktorgrades
der Julius-Maximilians-Universität
Würzburg

vorgelegt von
Susanne Fechner
aus Berlin

Würzburg 2008

Eingereicht am: 03. 07. 2008
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. G. Gerber
2. Gutachter: Prof. Dr. T. Brixner
der Dissertation

1. Prüfer: Prof. Dr. G. Gerber
2. Prüfer: Prof. Prof. Dr. T. Brixner
3. Prüfer: Prof. Prof. Dr. G. Reents
im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 06. 08. 2008

Doktorurkunde ausgehändigt am: _____

Liste eigener Veröffentlichungen

- A. Witomski, E. Lacot, O. Hugon and S. Fechner,
Absolute measurement of laser frequency-shifted optical feedback by pump modulation,
Opt. Commun. **254** (1-3) 119–127 (2005).
- P. Nuernberger, G. Vogt, R. Selle, S. Fechner, T. Brixner, and G. Gerber,
Generation of femtosecond pulse sequences in the ultraviolet by spectral phase modulation,
In J. T. Sheridan and F. Wyrowski (Eds.), *Photon Management II*, Proceedings of SPIE **6187**, 61870M (2006).
- P. Nuernberger, G. Vogt, R. Selle, S. Fechner, T. Brixner, and G. Gerber,
Generation of shaped ultraviolet laser pulses at the third harmonic of titanium-sapphire femtosecond laser radiation,
Appl. Phys. B **88**, 519–526 (2007).
- S. Fechner, F. Dimler, T. Brixner, G. Gerber and D. J. Tannor,
The von Neumann picture: a new representation for ultrashort laser pulses,
Opt. Express **15** (23) 15387–15401 (2007).
- R. Selle, P. Nuernberger, F. Langhojer, F. Dimler, S. Fechner, G. Gerber and T. Brixner,
Generation of polarization-shaped ultraviolet femtosecond pulses,
Opt. Lett. **33** 803–805 (2008).
- A. Rodenberg, S. Fechner, F. Dimler, D.J. Tannor, G. Gerber, and T. Brixner,
Experimental implementation of ultrashort laser pulses in the von Neumann picture,
eingereicht (2008).

Inhaltsverzeichnis

Liste eigener Veröffentlichungen	3
1 Einleitung	1
2 Mechanismen der Quantenkontrolle	5
2.1 Einzelparameterkontrolle	6
2.2 Theorie der Optimalen Kontrolle	8
2.3 Adaptive Kontrolle	9
3 Mathematische Beschreibung ultrakurzer Laserpulse	13
3.1 Zeit- und Frequenzraum	13
3.2 Kombinierte Zeit-Frequenzraumdarstellungen	20
3.2.1 Wigner-Darstellung	21
3.2.2 Husimi-Darstellung	23
4 Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse	27
4.1 Femtosekunden-Lasersystem	27
4.2 Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse	28
4.2.1 Autokorrelation	29
4.2.2 Frequenz aufgelöste Autokorrelation	31
4.2.3 Spektrale Interferometrie	34
5 Methoden zur Formung von ultrakurzen Laserpulsen	39
5.1 Techniken zur Impulsformung	39
5.2 LCD-Impulsformung	42
5.2.1 Funktionsprinzip	42
5.2.2 Steuerung des Polarisationszustandes ultrakurzer Laserpulse	44
5.2.3 Amplituden- und Phasenformung	48
5.2.4 Simulation LCD-geformter Laserpulse	48
6 Planung und Realisierung eines Aufbaus zur Manipulation des Polarisationszustandes ultrakurzer Laserpulse	57
6.1 Volume Phase Holographic-Gitter	57
6.2 Experimentelle Umsetzung	60

7	Die von Neumann-Darstellung	65
7.1	Formalismus	66
7.2	Übertragung auf diskrete, endliche Signale	73
7.2.1	Vergrößerung der von Neumann-Ebene	75
7.2.2	Einführung zyklischer Randbedingungen	78
7.2.3	Verwendung eines übervollständigen Basissatzes	81
7.3	Interpretation	83
7.4	Vergleich mit anderen Darstellungen elektrischer Felder	86
7.5	Anwendung in Quantenkontroll-Experimenten	89
8	Experimentelle Realisierung von von Neumann Laserpulsen	95
8.1	Verfügbares Spektrum	96
8.2	Realisierung von Doppelimpulsen	98
8.3	Darstellung eines Dreifachimpulses	102
9	Zusammenfassung	105
	Conclusion	111
	Anhang	111
A	Analytische Berechnung der Überlappmatrix	113
	Literaturverzeichnis	115
	Danksagung	139
	Lebenslauf	143

Kapitel 1

Einleitung

Licht gehört zu den selbstverständlichsten und gleichzeitig rätselhaftesten Naturphänomenen. Es ist in unserem Alltag allgegenwärtig und die Wechselwirkung von Licht mit Materie bestimmt zu einem großen Anteil die Art und Weise, wie wir unsere Umgebung wahrnehmen. Im Prozess der Photosynthese wird Licht direkt in von uns verwertbare Energie umgewandelt, so dass der Großteil der uns heute zur Verfügung stehenden Energie letztendlich auf eine durch Licht ausgelöste chemische Reaktion zurückzuführen ist.

Lange Zeit gab es unter Wissenschaftlern große Uneinigkeit über den physikalischen Charakter von Licht. Dabei war die Frage, ob es sich um eine elektromagnetische Welle, oder um ein klassisches Teilchen handelt würde. Erst im Rahmen der Quantenmechanik gelang es, diesen Streit endgültig beizulegen. Heute wissen wir, dass Licht aus „Photonen“ genannten Quanten besteht, die wie alle quantenmechanischen Teilchen, gleichzeitig Wellen- und Teilcheneigenschaften aufweisen.

Licht ist deshalb das perfekte Werkzeug zur Untersuchung und Manipulation quantenmechanischer Vorgänge. Dabei steht insbesondere die aktive Steuerung von chemischen Reaktionen auf molekularer Ebene im Mittelpunkt des Interesses. Allerdings sind die darin involvierten Quantensysteme derart komplex, dass eine genaue mathematische Beschreibung der ablaufenden Prozesse oft nicht möglich ist. Somit stellt sich die Frage, welche Art von Licht es erlaubt, ihren genauen Ablauf zu ergründen oder sogar ihr Ergebnis zu kontrollieren.

Die geeigneten elektrischen Felder müssen eine Zeitauflösung bieten, die der intrinsischen Zeitskala des zu beobachtenden/kontrollierenden Vorgangs entspricht. Im Falle von chemischen Reaktionen benötigt man somit eine Zeitauflösung von etwa 100 Femtosekunden ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ fs}$). Diese stand lange Zeit nicht zu Verfügung. Erst die Entwicklung von Femtosekundenlasern vor etwa 25 Jahren ermöglichte es, die zeitaufgelöste Dynamik chemischer Reaktionen zu beobachten. Dies gelang zuerst Ahmed Zewail, der 1999 für seine Verdienste auf dem Gebiet der „Femto-Chemie“ mit dem Nobelpreis für Chemie ausgezeichnet wurde [1, 2].

Möchte man diese ultraschnellen Prozesse nicht nur beobachten, sondern auch aktiv beeinflussen, so müssen die Laserpulse an die spezifischen Bedürfnisse des zu kontrol-

lierenden Systems angepasst werden. Zu diesem Zweck wurden während der letzten 20 Jahre verschiedene Methoden zur Impulsformung geschaffen, die es ermöglichen, den Verlauf des elektrischen Feldes in Amplitude, Phase und/oder Polarisation „maßgeschneidert“ zu verändern. Doch welche der unzähligen denkbaren Impulsformen ist zur Kontrolle des vorliegenden Systems geeignet?

Eine Antwort für einfache Systeme liefert die Theorie der Optimalen Kontrolle, die ausgehend von der zeitabhängigen Schrödingergleichung des Quantensystems das jeweils optimale Feld bestimmt. Für Moleküle realistischer Größe versagt sie jedoch, da zu deren Berechnung zu viele Näherungen gemacht werden müssen. Den Durchbruch erzielten schließlich 1992 Judson und Rabitz mit ihrem Vorschlag, das Quantensystem selbst zur Bestimmung des elektrischen Feldes zu benutzen [3]. Dazu werden verschiedene Laserpulse von einem, an Prinzipien der biologischen Evolution angelehnten, Lernalgorithmus vorgeschlagen und an dem betrachteten Molekül getestet. Mittels eines experimentellen Rückkopplungssignals bewertet der Algorithmus die einzelnen Impulse und entwickelt daraus den nächsten Satz an Laserpulsen. Nach mehreren Iterationen erhält man schließlich ein optimal an das untersuchte Problem angepasstes elektrisches Feld. Diese Methode der adaptiven Quantenkontrolle wurde an einer Vielzahl von Aufgaben, wie zum Beispiel dem selektiven Bindungsbruch und der selektiven Bindungsknüpfung in Molekülen oder auch der Steuerung von geometrischen Umordnungen in *cis-trans*-Isomeren, erfolgreich experimentell umgesetzt.

So erfolgreich diese Technik auch ist, so birgt sie dennoch den großen Nachteil, dass das gefundene optimale elektrische Feld nur in den seltensten Fällen Rückschlüsse auf die der Reaktion zu Grunde liegenden Mechanismen zulässt. Dieses Problem der „Inversion“ ist eine der, auch von theoretischer Seite her, noch ungelösten Herausforderungen.

Eine seiner Ursachen ist, dass elektrische Felder in Experimenten zur adaptiven Quantenkontrolle üblicherweise über ihre spektrale Amplitude und Phase beschrieben werden. Infolgedessen werden auch die optimalen Impulse in dieser unintuitiven Parametrisierung gesucht. Würde diese Suche in einem dem zu kontrollierenden Prozess besser angepassten Parametersatz durchgeführt werden, so könnte man eventuell schon aus dem Verlauf der Optimierung Informationen über den tatsächlichen Reaktionsmechanismus gewinnen.

Die in dieser Arbeit vorgestellte „von Neumann“-Darstellung für ultrakurze Laserpulse drückt jeden Laserpuls als eine Summe von an verschiedenen Punkten im Zeit-Frequenz-Phasenraum zentrierten, elementaren Laserpulsen aus. Jeder dieser elementaren Impulse entspricht einer Anregung- oder Abregung zu dem seiner Phasenraumposition entsprechenden Zeitpunkt und mit der seiner Zentralfrequenz entsprechenden Frequenz. Die Verwendung dieser Darstellung als Parametersatz für den in der adaptiven Kontrolle verwendeten Lernalgorithmus sollte somit die Interpretation der gefundenen elektrischen Felder wesentlich vereinfachen.

Die vorliegende Dissertation gibt in Kapitel 2 zunächst einen kurzen Überblick über die verschiedenen Ansätze zur Realisierung von Quantenkontrolle. Anschlie-

ßend (Kapitel 3) werden die verschiedenen, etablierten Arten der mathematischen Beschreibung ultrakurzer Laserpulse vorgestellt und in Kapitel 4 ihre experimentelle Erzeugung und Charakterisierung erklärt. Kapitel 5 beschreibt die unterschiedlichen Techniken zur Formung von Femtosekundenimpulsen und legt dabei besonderen Wert auf die in dieser Arbeit verwendete Impulsformung mit Flüssigkeitskristalldisplays. Der Aufbau eines verbesserten Polarisationsimpulsformers wird dann in Kapitel 6 erläutert. Kapitel 7 beschäftigt sich schließlich ausführlich mit der von Neumann-Darstellung, diskutiert ihre Eigenschaften und stellt verschiedene potentielle Anwendungen dieser neuen Darstellung für ultrakurze Laserpulse vor. Im Anschluss wird in Kapitel 8 die experimentelle Realisierung von in der von Neumann-Darstellung definierten Laserpulsen mittels Amplituden- und Phasenformung beschrieben. Dabei erfolgt eine Analyse der Grenzen und Möglichkeiten im Hinblick auf eine Anwendung der von Neumann-Darstellung in der Quantenkontrolle.

Kapitel 2

Mechanismen der Quantenkontrolle

In der klassischen Chemie wird der Ausgang einer chemischen Reaktion durch makroskopische Parameter wie Druck, Temperatur und Konzentration gesteuert. Durch geschickte Wahl dieser Parameter kann die Thermodynamik und die Kinetik, also die Gleichgewichtslage und die Geschwindigkeit einer solchen Reaktion in gewissen Grenzen beeinflusst werden. Katalysatoren erlauben es bei einigen Reaktionstypen Kontrolle über mikroskopische Reaktionswege zu erlangen, die im Allgemeinen jedoch für die Methoden der konventionellen Chemie nicht zugänglich sind.

Die Verwendung von Licht als Werkzeug zur direkten Adressierung quantenmechanischer Eigenschaften der Moleküle eröffnet viele neue Möglichkeiten den Ausgang einer chemischen Reaktion aktiv zu beeinflussen. Einer der ersten Ansätze war es, streng monochromatisches Laserlicht zur selektiven Zerstörung chemischer Bindungen zu benutzen. Durch Einstrahlen von resonantem Licht sollte die gewählte Bindung zu immer stärkeren Schwingungen angeregt werden, die schließlich zum Bindungsbruch führen [4, 5]. Allerdings weisen komplexere Moleküle eine Vielzahl von miteinander gekoppelten Schwingungsmoden auf. In den meisten Fällen ist die IVR („intramolecular vibrational energy redistribution“) genannte statistische Umverteilung der Schwingungsenergie auf andere Schwingungsmoden wesentlich schneller als der Bruch der gewählten Bindung. Die Amplitude der energetisch günstigsten Schwingungsmoden wird somit sukzessive vergrößert, bis es schließlich zum Bindungsbruch kommt [1, 6–8]. Stellt dies für isolierte Moleküle im gasförmigen Zustand schon ein Problem dar, so ist der Ansatz in flüssiger Phase, wo durch Kopplung an andere Moleküle noch zusätzliche Kanäle zur Energieverteilung zur Verfügung stehen, auf jeden Fall unbrauchbar.

Die Variation einfacher Eigenschaften des Lichtes, wie Wellenlänge oder Intensität, ermöglicht somit keine oder nur sehr wenig Kontrolle über quantenmechanische Systeme. Erst die Ausnutzung der Kohärenz von kontinuierlichem oder gepulstem Laserlicht hat zur Entwicklung zahlreicher Methoden der Quantenkontrolle geführt, die es erlauben, ein System von einem definierten Ausgangszustand in einen ebenso wohldefinierten Endzustand zu transferieren. Diese sollen im Folgenden kurz vorgestellt werden. Dabei wird im ersten Abschnitt zunächst auf drei Methoden ein-

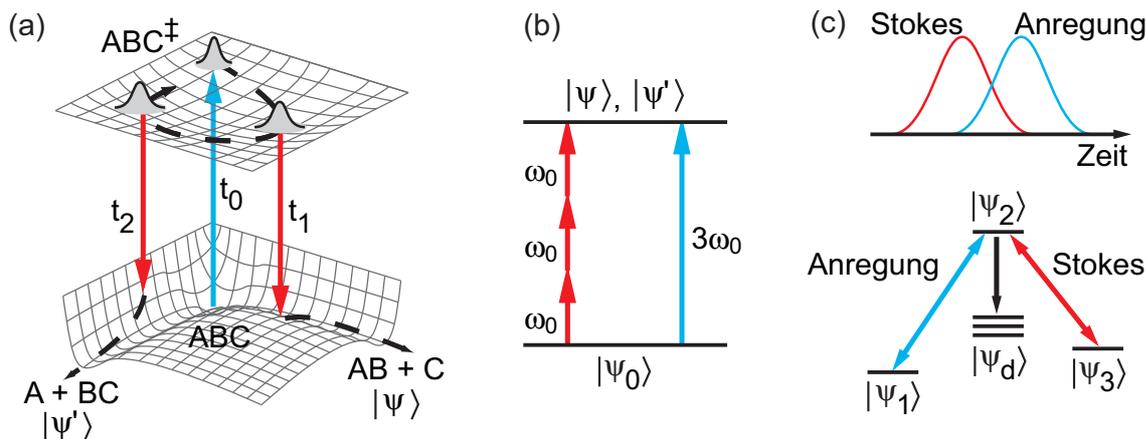


Abbildung 2.1: Einzelparameter-Kontrollschemata. (a) Das Tannor-Kosloff-Rice-Schema, hier durch eine Anrege-Abrege-Abfolge verdeutlicht, nutzt die Propagation eines Wellenpakets auf einer angeregten Potentialfläche aus. Durch Variation der Zeitspanne zwischen Anrege- und Abrege-Impuls kann beim Rücktransfer auf die Potentialfläche des Grundzustandes die Entwicklung in den gewünschten Reaktionskanal erreicht werden. (b) Bei der Brumer-Shapiro-Phasenkontrolle wird die Interferenz zwischen verschiedenen Quantenpfaden ausgenutzt. Zwei monochromatische Laser mit den Frequenzen ω_0 und $3\omega_0$ verbinden den Grundzustand $|\Psi_0\rangle$ mit den energetisch entarteten Zuständen $|\Psi\rangle$ und $|\Psi'\rangle$. Durch Variation der relativen Phase der beiden Laser kann Selektivität bei der Population dieser Zustände erreicht werden. (c) Bei der STIRAP-Technik wird ein vollständiger Populationstransfer zwischen den über den Zustand $|\Psi_2\rangle$ gekoppelten Zuständen $|\Psi_1\rangle$ und $|\Psi_3\rangle$ durch eine konterintuitive Impulsfolge erreicht. Dabei bleibt der Zustand $|\Psi_2\rangle$ während des ganzen Prozesses unbevölkert, so dass Verluste auf Grund des dissipativen Zustandes $|\Psi_d\rangle$ vermieden werden können.

gegangen, die durch die Kontrolle eines einzelnen Parameters das Verhalten des betrachteten Systems steuern. Im zweiten Abschnitt wird dann eine sehr einfache Einführung in die Theorie der Optimalen Kontrolle gegeben. Sie fasst die drei Kontrollansätze zusammen und fügt weitere Freiheitsgrade hinzu. Eine experimentelle Umsetzung der Theorie der Optimalen Kontrolle ist die adaptive Quantenkontrolle, die im letzten Abschnitt dieses Kapitels vorgestellt werden soll.

2.1 Einzelparameterkontrolle

In den 1980er Jahren wurden verschiedene Konzepte zur kohärenten Kontrolle quantenmechanischer Systeme entwickelt. Sie nutzen jeweils unterschiedliche Aspekte der Quantenmechanik aus und sind zusammen in Abbildung 2.1 dargestellt.

An erster Stelle soll hier das 1986 von Tannor, Kosloff und Rice entwickelte und nach ihnen benannte Kontrollschema vorgestellt werden. Es nutzt die zeitliche Propagation eines Schwingungs-Wellenpakets auf einer elektronisch angeregten Potentialfläche aus [9–12], um aktiv die Population in verschiedene Reaktionskanäle zu

steuern. Dies ist in Abbildung 2.1(a) für ein Molekül, das ursprünglich in der Konfiguration ABC vorliegt und auf zwei verschiedene Arten, nämlich in $AB + C$ oder $A + BC$, zerfallen kann, veranschaulicht. Zum Zeitpunkt t_0 regt ein breitbandiger Laserpuls ein Vibrationswellenpaket in einen höherenergetischen elektronischen Zustand ABC^\ddagger an. Dieses fängt an, auf der dazugehörigen Potentialfläche zu propagieren. Durch Einstrahlen eines zweiten Laserpulses zum richtigen Zeitpunkt wird dann der gewünschte Reaktionsausgang (zum Beispiel ein Brechen der Bindung $A - B$) erreicht. Durch Variation der Verzögerungszeit zwischen Anrege- und Abrege-Impuls ist es möglich, zwischen den beiden Reaktionskanälen $|\Psi\rangle$ und $|\Psi'\rangle$ zu entscheiden. Eine erste experimentelle Realisierung dieses intuitiven Kontrollschemas gelang in den frühen 1990er Jahren in den Gruppen von Gerber [13–15] und Zewail [16].

Während das Tannor-Kosloff-Rice-Schema vollständig im Zeitraum erklärt wird, findet die Interpretation eines weiteren, Brumer-Shapiro-Schema genannten Konzeptes ausschließlich im Frequenzraum statt. Es wurde 1986 von Brumer und Shapiro vorgeschlagen [17–21] und 1990 an Atomen [22] und kurz danach an kleinen Molekülen [23, 24] demonstriert. Es nutzt die Interferenz zwischen zwei verschiedenen Quantenpfaden, die den Grundzustand $|\Psi_0\rangle$ des untersuchten Quantensystems mit den zwei energetisch entarteten Zielzuständen $|\Psi\rangle$ und $|\Psi'\rangle$ verbinden, aus. Wie in Abbildung 2.1(b) dargestellt, können diese entweder durch Absorption von drei Photonen der Frequenz ω_0 (rot eingezeichnet) oder durch Absorption eines Photons der Frequenz $3\omega_0$ (blau eingezeichnet) erreicht werden. Benutzt man zwei monochromatische Laser der Frequenz ω_0 und $3\omega_0$ so bewirkt eine Modulation ihrer relativen Phase eine Modulation der Population in den Zielzuständen $|\Psi\rangle$ und $|\Psi'\rangle$. Je nachdem, welche Phase eingestellt wurde, kommt es zu konstruktiver oder destruktiver Interferenz zwischen den den Laserfrequenzen entsprechenden Quantenpfaden. Schon dieses vereinfachte Bild des Kontrollschemas (für eine genaue Beschreibung siehe [25–27]) zeigt, dass man zur Realisierung von Quantenkontrolle stets einen Mehrphotonenprozess benötigt. Zudem sei hier angemerkt, dass sich auch die kohärente Kontrolle von Mehrphotonenabsorption mit ultrakurzen Laserpulsen im Rahmen eines Brumer-Shapiro-Modells erklären lässt: Das Spektrum eines solchen Laserpulses enthält viele verschiedene Frequenzkombinationen, die den Ausgangszustand $|\Psi_0\rangle$ mit dem vielfach entarteten Endzustand $|\Psi_1^i\rangle$ verbinden. Diese vielen verschiedenen Quantenpfade zu $|\Psi_1^i\rangle$ interferieren miteinander, weshalb durch eine Anpassung der spektralen Phase die Population im Zielzustand kontrolliert werden kann [28–30]. Interessant ist, dass wie in [12] ausführlich erklärt, auch das Tannor-Kosloff-Rice-Schema in diesem erweiterten Brumer-Shapiro-Bild interpretiert werden kann.

Ein weiterer, sehr interessanter Ansatz wurde 1988 in der Gruppe von Bergmann entwickelt und demonstriert [31, 32]. Er ist in Abbildung 2.1(c) schematisch dargestellt und wird STIRAP („stimulated Raman adiabatic passage“) genannt. In einem Λ -System soll die Population vollständig zwischen den beiden energetisch niedrig liegenden Zuständen $|\Psi_1\rangle$ und $|\Psi_3\rangle$ transferiert werden. Diese sind über ein energetisch höherliegendes Zwischenniveau $|\Psi_2\rangle$ gekoppelt. Der Anrege-Impuls entspricht dem Übergang von Zustand $|\Psi_1\rangle$ in den Zwischenzustand $|\Psi_2\rangle$. Dieser ist wiederum

durch den sogenannten Stokes-Impuls an den Zustand $|\Psi_3\rangle$ gekoppelt. Intuitiverweise würde man erwarten, dass eine Population des Zustandes $|\Psi_3\rangle$ nur möglich ist, wenn der Stokes-Impuls dem Anrege-Impuls folgt. Dabei würde jedoch der Zustand $|\Psi_2\rangle$ nennenswert bevölkert werden und Verluste in den dissipativen Zustand $|\Psi_d\rangle$ auftreten. Eine sorgfältige Analyse der zu Grunde liegenden Quantenmechanik [12] zeigt, dass eine Population von $|\Psi_2\rangle$ vollständig vermieden werden kann, wenn der Stokes-Impuls zeitlich vor dem Anrege-Impuls eingestrahlt wird. Durch einen optimalen Überlapp zwischen diesen beiden Impulsen finden Absorption und stimulierte Emission gewissermaßen gleichzeitig statt, so dass bei vollständigem Populationstransfer in den Zustand $|\Psi_3\rangle$ die transiente Population von $|\Psi_2\rangle$ stets Null ist.

Die drei vorgestellten Kontrollschemas sind einfach interpretierbare Spezialfälle der Quantenkontrolle. Vor allem bei großen Molekülen, die eine komplizierte Dynamik aufweisen, stoßen sie schnell an ihre Grenzen. Um eine effektive Kontrolle auch dieser Systeme zu erreichen, ist eine Verallgemeinerung der soeben präsentierten Konzepte notwendig. Diese ist in der Theorie der Optimalen Kontrolle realisiert worden und wird im nächsten Abschnitt kurz erklärt.

2.2 Theorie der Optimalen Kontrolle

Die Theorie der Optimalen Kontrolle [33–35] ist eine mit der Variationsrechnung eng verwandte mathematische Methode, die vielfältige Anwendung in den Natur- und Ingenieurwissenschaften findet [12]. Mit der Übertragung dieser Technik auf das Problem der Quantenkontrolle gelang es Rabitz und Kosloff [36–38] eine Methode zu schaffen, die die genaue Berechnung der zur Quantenkontrolle einfacher Systeme optimalen Felder ausgehend von der zeitabhängigen Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = H(t) |\Psi(t)\rangle \quad (2.1)$$

erlaubt. Der zeitabhängige Hamiltonoperator $H(t)$ lässt sich als Summe des Hamiltonoperators H_0 des ungestörten Systems und einem Wechselwirkungsanteil $H_{WW}(t)$ schreiben:

$$H(t) = H_0 + H_{WW}(t). \quad (2.2)$$

Die Kunst besteht darin, im Wechselwirkungsanteil alle zur Beschreibung des untersuchten Systems notwendigen Effekte zu berücksichtigen, diesen jedoch so einfach wie möglich zu wählen. Die Wirkung des elektrischen Feldes $\vec{E}(t)$ wird dafür üblicherweise in der Dipolnäherung durch das Skalarprodukt $-\vec{\mu} \cdot \vec{E}(t)$ aus dem Dipolmoment $\vec{\mu} = e\vec{r}$ und dem elektrischen Feld beschrieben.

Gesucht wird ein elektrisches Feld $\vec{E}(t)$, welches das quantenmechanische System ausgehend vom Zustand $|\Psi_0\rangle = |\Psi(t=0)\rangle$ innerhalb einer Zeit t_f in einen definierten Zielzustand $|\Psi_T\rangle$ überführt. In der Sprache der Quantenmechanik bedeutet dies, dass der Überlapp

$$J = |\langle \Psi(t=t_f) | \Psi_T \rangle|^2 \quad (2.3)$$

zwischen dem gewünschten Zielzustand $|\Psi_T\rangle$ und dem durch Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld zur Zeit t_f erreichten Zustand $|\Psi(t = t_f)\rangle$ maximiert werden soll. Dazu werden Amplitude, Phase und eventuell auch die Polarisation des Feldes variiert, wobei stets sichergestellt werden muss, dass die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung erfüllt ist. Zusätzlich können Randbedingungen wie eine Einschränkung des Spektralbereiches oder eine maximale Feldintensität implementiert werden. Dies resultiert in einem System nichtlinearer Differentialgleichungen, das iterativ gelöst wird. Auf diese Weise erhält man ein elektrisches Feld, das zu jedem Zeitpunkt die oben genannten Bedingungen so gut wie möglich erfüllt.

Wenn bei der Berechnung keine Probleme auftreten und der Hamiltonoperator das betrachtete System genau genug beschreibt, handelt es sich bei dem gefundenen Feld tatsächlich um das optimale Ergebnis. Allerdings können nur recht einfache Systeme wirklich akkurat berechnet werden. Möchte man größere Moleküle kontrollieren, so müssen entweder stark vereinfachende Näherungen gemacht werden, oder man riskiert durch numerische Instabilitäten auf Grund von zu vielen Freiheitsgraden die Konvergenz des Lösungsalgorithmus zu verhindern [39].

Doch selbst wenn ein wirklich optimales Feld gefunden wurde, ist die experimentelle Realisierung oft nur schwer möglich. Dazu trägt zum einen bei, dass experimentelle Impulsformung (siehe Kapitel 5) oft über wesentlich weniger Freiheitsgrade verfügt als zur Berechnung des Feldes benutzt wurden und somit das elektrische Feld nur näherungsweise realisieren kann. Zum anderen kann selbst der sorgfältigst definierte Hamiltonoperator nicht die tatsächlichen Bedingungen am Ort des Experiments, wie zum Beispiel ein experimentelles Rauschen der Laserintensität oder auch Unsicherheiten in der Positionierung der Probe, genau berücksichtigen. Somit ist die Theorie der Optimalen Kontrolle ein mächtiges aber nicht allmächtiges Werkzeug zur Bestimmung von optimalen Feldern und zur Realisierung von Quantenkontrolle. Zudem kommt hinzu, dass sie zwar den genauen Zeitverlauf eines solchen Feldes berechnen kann, aber keinerlei Aussage über die diesem elektrische Feld zu Grunde liegenden Mechanismen macht.

2.3 Adaptive Kontrolle

Die von Judson und Rabitz 1992 in ihrem berühmten Artikel „Teaching lasers to control molecules“ [3] vorgeschlagene Methode der Adaptiven Quantenkontrolle ist eine experimentelle Umsetzung von Ideen aus der Theorie der optimalen Kontrolle. Auf Grund der Verwendung eines experimentellen Rückkopplungssignals¹ werden keinerlei Kenntnisse über die Quantenmechanik des zu kontrollierenden Systems benötigt, vielmehr steuert das System selbst die Suche nach einer optimalen Lösung.

In Abbildung 2.2 ist diese Suche schematisch dargestellt: Vor dem Start der Optimierung wird deren Ziel festgelegt und eine auf messbaren Größen basierende Fitnessfunktion definiert, die Auskunft darüber gibt, inwiefern ein Laserpuls dem

¹Weswegen die adaptive Quantenkontrolle oft auch „closed loop quantum control“ genannt wird.

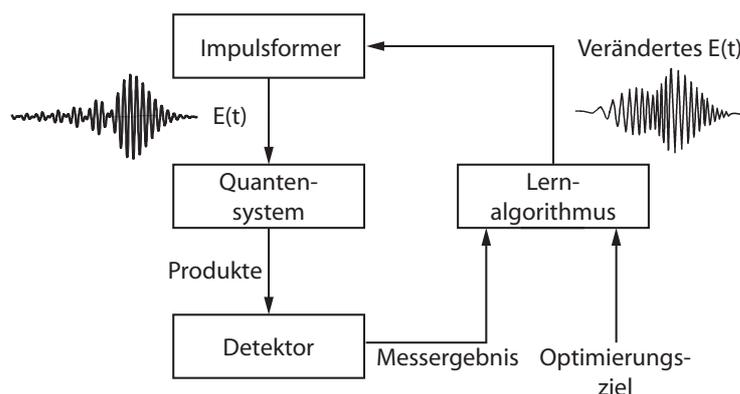


Abbildung 2.2: Adaptive Quantenkontrolle. Von einem computergesteuerten Lernalgorithmus werden verschiedene Impulsformen vorgeschlagen. Anschließend werden diese auf ein Quantensystem angewandt und dann hinsichtlich des Optimierungsziels bewertet. Aus dieser experimentellen Rückkopplung entwickelt der Lernalgorithmus neue Vorschläge für den Verlauf des elektrischen Feldes.

Optimierungsziel entspricht. Anschließend wird der Algorithmus mit einem beliebigen, vom Experimentator oder vom Computer vorgegebenen, elektrischen Feld gestartet. Die Vielfalt der zur Verfügung stehenden Impulsformen ist abhängig vom jeweils benutzten Impulsformer. In dieser Arbeit stand ein auf einem zweischichtigen Flüssigkristalldisplay mit 128 Pixeln basierender Impulsformer zur Verfügung, der es erlaubt für 128 unterschiedliche Frequenzen Amplitude und Phase oder aber Polarisation und Phase unabhängig voneinander einzustellen. Im Kontext der evolutionären Optimierungen heißt ein jeder solcher Freiheitsgrad „Gen“, ein vollständiger Satz an Genen (hier $2 \times 128 = 256$) „Individuum“. Zunächst wird ein „Generation“ genannter Satz an zufällig ausgewählten Individuen nacheinander auf das zu untersuchende Quantensystem angewandt und die Fitness eines jeden Individuums evaluiert. Für die nächste Iteration erzeugt der Algorithmus eine neue Generation an Laserpulsen. Dazu werden die besten Individuen aus der vorangegangenen Generation ausgewählt und die neue Generation durch Klonen (kopieren), Kreuzen (Austausch von Genen zwischen zwei Individuen) und Mutieren (zufällige Variation einiger Gene) aus ihnen erzeugt. Dieses Vorgehen wird solange wiederholt, bis die Fitness der besten Individuen einen Sättigungswert erreicht hat. Das entsprechende „beste“ Individuum ergibt das für das Problem „optimale“ elektrische Feld. Da allerdings stets nur ein kleiner Teil des zur Verfügung stehenden Parameterraumes erforscht werden kann, ist nie sicher, dass man auch tatsächlich das globale Maximum gefunden hat. Durch mehrere, nacheinander durchgeführte Optimierungen kann jedoch das Risiko, ein lokales Maximum für ein globales zu halten, deutlich verringert werden.

Bis heute ist adaptive Quantenkontrolle die erfolgreichste Methode zur Steuerung quantenmechanischer Systeme durch geformte ultrakurze Laserpulse. Da sie, außer einem aussagekräftigen experimentellen Rückkopplungssignal, keine Informati-

on über das Quantensystem benötigt, ist sie universell einsetzbar. Zahlreiche Übersichtsartikel geben einen Einblick in die anhaltend große Aktivität auf diesem Forschungsgebiet [40–47]. Dabei benutzen einige Anwendungen, wie zum Beispiel die automatische Impulskompression [48–59], die Erzeugung bestimmter Polarisationszustände [60, 61], die Filamentation von Femtosekundenimpulsen [62–65], die Generation von hohen Harmonischen [41, 66–70] oder auch die Kontrolle von optischen Nahfeldern an Nanostrukturen [71], die adaptive Quantenkontrolle zur Optimierung der Laserstrahlung selbst.

Das bei weitem wichtigste Anwendungsgebiet ist jedoch die adaptive Kontrolle chemischer Reaktionen. In der gasförmigen Phase gelang es bislang die Photodissoziation von Molekülen [72–81], die Beeinflussung quantenmechanischer Wellenfunktionen [82], die Anregung [83–86] und die Mehrfachionisation [87] von Atomen, die polarisationsabhängige Mehrfachionisation [88, 89] ebenso wie die isotopenselektive Ionisation und Fragmentation [90–94] von Dimeren, die Bevölkering bekleideter Zustände [95], die Rotation und die Ausrichtung von Molekülen [96, 97] und die Bewegung von Vibrationswellenpaketen [98] zu kontrollieren.

Doch auch in der kondensierten Phase konnte Quantenkontrolle an vielen Beispielen demonstriert werden. Angefangen bei der Erhöhung der Fluoreszenzausbeute von Molekülen [99–106], der Verbesserung von Raman-Signalen [54, 55, 107–111] oder der photochemischen Unterscheidung von Molekülen [112], ermöglicht sie sogar die aktive Steuerung der geometrischen Veränderungen von *cis-trans*-Isomeren [113–117]. Zudem ist die Methode nicht etwa nur auf Atome und kleinere Moleküle beschränkt, auch die Photochemie eines Lichtsammelkomplexes [118], des grün fluoreszierenden Proteins [119, 120] oder auch des Retinals im Protein Bacteriorhodopsin [105, 117] wurde erfolgreich kontrolliert.

Die Vielzahl der kontrollierbaren Prozesse wirft die Frage auf, welche Informationen über das untersuchte System aus der Form der optimalen Laserpulse gezogen werden können. Ist es, ähnlich wie bei den Einzelparameter-Kontrollschemas, möglich einzelne Mechanismen der Wechselwirkung zwischen elektrischem Feld und Quantensystem zu identifizieren? Was kann man daraus über die Geometrie der Potentialflächen lernen? Dieses sogenannte Problem der Inversion, das heißt die Umkehr der in der Theorie der optimalen Kontrolle durchgeführten Berechnungen, ist weiterhin eine der großen Herausforderungen auf dem Gebiet der Quantenkontrolle [121–127]. Die Schwierigkeit liegt hierbei darin, dass die große Anzahl an Freiheitsgraden das gleichzeitige Auftreten verschiedener Mechanismen nicht nur nicht verhindert, sondern vielmehr sogar fördert. Weiterhin wird die Analyse der optimalen Impulsformen dadurch erschwert, dass diese oftmals für den Kontrollmechanismus unnötige Strukturen beinhalten. Diese liegen in Bereichen des Laserspektrums, die auf die spezifische Reaktion keinen Einfluss haben. Für den Fall das ein Impuls mit hoher Fitness auch in diesen Spektralbereich Strukturen aufweist, werden diese vom evolutionären Algorithmus als nützlich gewertet und an folgende Generationen weitergegeben. So entstehen bisweilen unnötig komplizierte Impulsformen, die eine Interpretation schwierig bis unmöglich machen.

Die Verwendung von an den vermuteten Kontrollprozess besser angepassten Genen könnte diesen Aspekt deutlich verbessern. Natürlich sollten auch die „neuen“ Gene möglichst den kompletten, mit dem Impulsformer zugänglichen Parameterraum abdecken. Die in Kapitel 7 vorgestellte von Neumann-Transformation bildet eben diesen Parameterraum auf injektive Weise auf elementare, bandbreitebegrenzte Laserpulse ab. Benutzt man diese Impulse als Gene, so findet die Optimierung gleich in Abhängigkeit von physikalisch sinnvollen Parametern statt. So könnte beispielsweise jeder Teilimpuls eines resultierenden optimalen Laserpulses einem Schritt in einer Folge von Tannor-Kosloff-Rice-Zyklen entsprechen. Weiterhin ist es denkbar, diesen Basissatz zur Entwicklung „intelligenter“ Lernalgorithmen (siehe Abschnitt 7.5), die gezielt einzelne Strukturen eines Laserpulses auf ihre Funktionalität untersuchen können, zu benutzen. Die resultierenden Impulsformen würden sich durch eine geringere Komplexität bei gleicher Effizienz auszeichnen und somit eine Interpretation in Bezug auf zu Grunde liegende Kontroll-Mechanismen erleichtern.

Kapitel 3

Mathematische Beschreibung ultrakurzer Laserpulse

Unter ultrakurzen Laserpulsen versteht man Lichtimpulse von einigen Pico- oder sogar Femtosekunden Dauer. Um diese Impulse zu erzeugen müssen viele elektromagnetische Wellen verschiedener Frequenzen konstruktiv interferieren. Das resultierende elektrische Feld $\vec{E}(t, \vec{r})$ wird beschrieben durch die Maxwellgleichungen, die sich für homogene unmagnetische Materialien in die inhomogene Wellengleichung

$$-\nabla \times \left[\nabla \times \vec{E}(t, \vec{r}) \right] - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(t, \vec{r}) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(t, \vec{r}) \quad (3.1)$$

umformen lassen. Hierbei ist $c_0 = \sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}$ die Vakuumlichtgeschwindigkeit, ε_0 die Dielektrizitätskonstante und μ_0 die magnetische Permeabilität von Vakuum. Der Quellterm auf der rechten Seite von Gleichung (3.1) beinhaltet die induzierte dielektrische Polarisation $\vec{P}(t, \vec{r})$ und beschreibt die Kopplung zwischen dem elektrischen Feld und dem umgebenden Medium.

Zur besseren Veranschaulichung wesentlicher Zusammenhänge wird das elektrische Feld $\vec{E}(t, \vec{r})$ im folgenden Abschnitt als reellwertige skalare Funktion $E(t)$, deren Wert unabhängig vom Ort \vec{r} ist, behandelt. Letztere Vereinfachung entspricht der Betrachtung des elektrischen Feldes an einem festen Punkt \vec{r}_0 im Raum und ist gerechtfertigt, da man in den meisten Fällen die räumliche Propagation des Laserpulses getrennt von seiner zeitlichen Entwicklung behandeln kann. Weiterhin schränkt die Betrachtung des elektrischen Feldes als skalare Größe die Gültigkeit der im Folgenden gezogenen Schlüsse nicht ein, da diese auf jede Komponente von $\vec{E}(t, \vec{r})$ einzeln angewandt werden können.

3.1 Zeit- und Frequenzraum

Bei der Beschreibung elektrischer Felder hat man die Wahl, ob man sie als Funktion der Zeit t oder der Frequenz ω betrachtet. Dabei sind $E(t)$ und $E(\omega)$ äquivalente

Darstellungen des selben Feldes und untereinander durch die Fouriertransformation verknüpft:

$$E(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \exp(-i\omega t) dt = \mathcal{F}[E(t)] \quad (3.2)$$

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(i\omega t) d\omega = \mathcal{F}^{-1}[E(t)] \quad (3.3)$$

Da das $E(t)$ reell ist, gilt für das komplexwertige spektrale elektrische Feld $E(\omega) = E^*(-\omega)$, wobei der Stern die komplexe Konjugation bezeichnet. Eine vollständige Beschreibung des elektrischen Feldes ist also schon durch die Beiträge bei positiven Frequenzen

$$E^+(\omega) = \begin{cases} E(\omega) & \text{für } \omega \geq 0 \\ 0 & \text{für } \omega < 0 \end{cases} \quad (3.4)$$

gegeben.

Durch Fouriertransformation des komplexwertigen elektrischen Feldes $E^+(\omega)$ erhält man seine zeitliche Entsprechung $E^+(t)$:

$$E^+(t) = \mathcal{F}^{-1}[E^+(\omega)], \quad (3.5)$$

$$E^+(\omega) = \mathcal{F}[E^+(t)]. \quad (3.6)$$

Diese genügt – ebenso wie $E^+(\omega)$ – zur vollständigen Beschreibung des elektrischen Feldes, welches über

$$E(t) = E^+(t) + E^{+*}(t) \quad (3.7)$$

berechnet werden kann. Zur Erleichterung der Interpretation können die beiden Darstellungen $E^+(\omega)$ und $E^+(t)$ in ein Produkt aus einer reellen Amplitude und einem komplexen Phasenfaktor zerlegt werden:

$$E^+(\omega) = A(\omega) \exp[-i\Phi(\omega)], \quad (3.8)$$

$$E^+(t) = A(t) \exp[i\Phi(t)]. \quad (3.9)$$

Während die Amplituden $A(\omega) = |E^+(\omega)|$ und $A(t) = |E^+(t)|$ die Einhüllende des elektrischen Feldes im Frequenz- bzw. Zeitraum beschreiben, enthalten die Phasenterme die Oszillationen der Signale und sollen nun näher betrachtet werden. Die zeitliche Phase $\Phi(t)$ beschreibt die schnellen Oszillationen des zeitlichen elektrischen Feldes. Deshalb gibt ihre erste Ableitung nach der Zeit die Momentanfrequenz, also diejenige Frequenz mit der das elektrische Feld zum Zeitpunkt t schwingt, an:

$$\omega_m(t) = \frac{d\Phi(t)}{dt}. \quad (3.10)$$

Zur weiteren Analyse empfiehlt es sich die zeitliche Phase in eine Taylorreihe um den Zeitpunkt $t = 0$

$$\Phi(t) = \sum_{j=0}^{\infty} \frac{a_j}{j!} t^j, \quad (3.11)$$

mit Entwicklungskoeffizienten

$$a_j = \left. \frac{d^j \Phi(t)}{dt^j} \right|_{t=0} \quad (3.12)$$

zu entwickeln. Ohne Einschränkung der Allgemeinheit kann angenommen werden, dass das elektrische Feld um den Zeitpunkt $t = 0$ zentriert ist¹. Der Koeffizient nullter Ordnung a_0 legt die Position der Maxima der Oszillation bezüglich der Einhüllenden $A(t)$ fest und wird absolute Phase genannt. In den meisten gebräuchlichen Lasersystemen, so auch in dem unseren, fluktuiert die absolute Phase von Laserschuss zu Laserschuss, allerdings kann sie mittels eines interferometrischen Aufbaus [128, 129] stabilisiert werden. Erschwerend kommt hinzu, dass sie mit den gängigen Methoden der Impulscharakterisierung (siehe Abschnitt 4.2) nicht bestimmt werden kann. Während die absolute Phase bei Experimenten mit Laserpulsen von nur wenigen Femtosekunden Impulsdauer, wie zum Beispiel der Erzeugung Hoher Harmonischer [130], einen entscheidenden Einfluss auf das Messergebnis hat, ist sie bei denen in dieser Arbeit verwendeten Laserpulsen (mit Impulsdauern von 80 und mehr Femtosekunden) ohne Belang.

Der Koeffizient erster Ordnung a_1 ist identisch zur Trägerfrequenz oder Zentralfrequenz ω_0 des Laserpulses. Terme höherer Ordnung hingegen bewirken eine zeitliche Variation der Momentanfrequenz $\omega_m(t)$. Falls alle Koeffizienten a_j für $j \geq 2$ gleich Null sind, ist $\omega_m(t)$ konstant und gleich ω_0 . Solche Impulse werden „ungechirpt“ (von „chirp“ = Zwitschern) genannt. Im Gegensatz dazu spricht man „Up-Chirp“ wenn Momentanfrequenz $\omega_m(t)$ mit der Zeit zunimmt (d.h. $d\omega_m(t)/dt > 0$) und von einem „Down-Chirp“ wenn sie mit der Zeit abnimmt (d.h. $d\omega_m(t)/dt < 0$). Oft weisen geformte Laserpulse eine zeitlich stark variierende Momentanfrequenz auf, in der sich Bereiche mit Up-Chirp-Charakter und Bereiche mit Down-Chirp-Charakter abwechseln können.

Die zeitliche Phase $\Phi(t)$ wird dominiert vom Beitrag der schnellen Oszillationen mit der Trägerfrequenz ω_0 , so dass der Einfluss der Koeffizienten höherer Ordnung aus Gleichung (3.12) oft verdeckt wird. Die nichtlineare zeitliche Phase

$$\varphi(t) = \Phi(t) - \omega_0 t, \quad (3.13)$$

ist um den Term $\omega_0 t$ korrigiert und ermöglicht es deshalb $E^+(t)$ als Produkt einer komplexen Einhüllenden $\hat{A}(t)$ und einer Schwingung mit der Frequenz ω_0 zu schreiben:

$$E^+(t) = A(t) \exp[i\varphi(t)] \times \exp(i\omega_0 t) = \hat{A}(t) \exp(i\omega_0 t) \quad (3.14)$$

Allerdings ist diese Faktorisierung nur dann sinnvoll, wenn sich die komplexe Einhüllende $\hat{A}(t) = A(t) \exp[i\varphi(t)]$ während eines optischen Zyklus $T = 2\pi/\omega_0$, das

¹Die Wahl eines anderen Referenzpunktes t_0 würde, wie später bei der Diskussion der spektralen Phase $\Phi(\omega)$ noch gezeigt wird, lediglich eine Veränderung des linearen Terms b_1 in Gleichung (3.23) bewirken.

heißt innerhalb einer Oszillation des elektrischen Feldes, nur wenig ändert:

$$\left| \frac{d}{dt} \hat{A}(t) \right| \ll \omega_0 \left| \hat{A}(t) \right|. \quad (3.15)$$

Ist Bedingung (3.15) erfüllt, so heißt Gleichung (3.14) „slowly-varying envelope approximation“ (SVEA) des betrachteten Laserpulses [131]. Die SVEA ist lediglich für Laserpulse von nur wenigen optischen Zyklen Impulsdauer problematisch und für sämtliche in dieser Arbeit verwendeten Impulse gültig. Soweit nicht anders vermerkt, werden deshalb im Folgenden alle Laserpulse im Rahmen der SVEA als Produkt der reellen Amplitude $A(t)$ und dem nichtlinearen Phasenfaktor $\exp[i\varphi(t)]$ beschrieben². Infolgedessen muss die Fouriertransformation des elektrischen Feldes vom Zeit- zum Frequenzraum bezüglich der Frequenz ω_0 definiert werden:

$$E^+(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} A(t) \exp[i\varphi(t)] \exp[i(\omega + \omega_0)t] dt, \quad (3.16)$$

und für die Momentanfrequenz ω_m (definiert in Gleichung (3.10)) ergibt sich im Rahmen der SVEA folgender Ausdruck:

$$\omega_m(t) = \omega_0 + \frac{d\varphi(t)}{dt}. \quad (3.17)$$

Eine weitere wichtige Größe zur Beschreibung von Lichtimpulsen ist die Intensität (in W/cm^{-2}), die im Zeitraum als der Mittelwert von $E(t)^2$ über einen optischen Zyklus definiert ist. Bei ihrer Berechnung ist die SVEA von großem Nutzen und es ergibt sich

$$I(t) = c_0 \varepsilon_0 n \frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} E^2(t') dt' = 2c_0 \varepsilon_0 n A(t)^2, \quad (3.18)$$

wobei n für den Brechungsindex des umgebenden Mediums steht. Aus der Intensität kann der Energiefluss F , das heißt, die Energie pro Flächeneinheit, die in einem Impuls enthalten ist, durch Integration über die gesamte Impulsdauer erhalten werden:

$$F = \int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt. \quad (3.19)$$

Nun soll der Laserpuls $E^+(\omega)$ im Frequenzraum betrachtet werden. Analog zu Gleichung (3.18) erhält man die spektrale Intensität $I(\omega)$ über

$$I(\omega) = 2\varepsilon_0 c_0 n A(\omega)^2. \quad (3.20)$$

²Für bekanntes $E^+(\omega)$ kann die komplexe Einhüllende auch über die inverse Fouriertransformation bestimmt werden:

$$\hat{A}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E^+(\omega + \omega_0) \exp(i\omega t) d\omega$$

Das Integral über alle Frequenzen liefert wieder den Energiefluss F , weshalb gilt:

$$F = \int_{-\infty}^{\infty} I(\omega) d\omega = \int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt. \quad (3.21)$$

Die Tatsache, dass die Energie eines Signals im Frequenzraum mit der im Zeitraum übereinstimmt wird auch als Parsevalsche Gleichung bezeichnet.

Auch die spektrale Phase kann, analog zur zeitlichen, in eine Taylorreihe entwickelt werden. Sinnvollerweise wählt man die Trägerfrequenz ω_0 als Entwicklungspunkt und erhält

$$\Phi(\omega) = \sum_{j=0}^{\infty} \frac{b_j}{j!} (\omega - \omega_0)^j, \quad (3.22)$$

mit den Koeffizienten

$$b_j = \left. \frac{d^j \Phi(\omega)}{d\omega^j} \right|_{\omega=\omega_0}. \quad (3.23)$$

Wieder gibt der Koeffizient nullter Ordnung $b_0 = a_0$ die absolute Phase an. Der Koeffizient erster Ordnung b_1 hingegen bewirkt eine Verschiebung des Laserpulses im Zeitraum bezüglich des Punktes $t_0 = 0$ fs. Dies wird deutlich, wenn man den Effekt eines zusätzlichen spektralen Phasenkoeffizienten b_1 auf ein beliebiges elektrisches Feld $E(\omega)$ im Frequenzraum betrachtete. Das dazugehörige elektrische Feld im Zeitraum ergibt sich dann zu

$$\mathcal{F}^{-1}[E(\omega) \times \exp(-b_1\omega)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp[i\omega(t - b_1)] d\omega = E(t - b_1), \quad (3.24)$$

der Impuls wurde im Zeitraum also genau um b_1 verschoben. Dies wird in Abbildung 3.1(a) und (b) veranschaulicht. Ein Laserpuls mit gaußförmiger spektraler Intensität (schwarze Linie in Abbildung 3.1(a)) und flacher spektraler Phase (grüne Linie in Abbildung 3.1(a)), das heißt mit $b_j = 0$ für alle j , resultiert im Zeitraum in einem um $t_0 = 0$ fs zentrierten gaußförmigen Impuls (grüne Linie in Abbildung 3.1(b)). Wird nun der Koeffizient erster Ordnung, b_1 auf 30 fs erhöht (rote Linie in Abbildung 3.1(a)), so verschiebt sich dieser zeitliche Impuls um genau 30 fs (rote Linie in Abbildung 3.1(a)). Man erkennt deutlich, dass sämtliche anderen Eigenschaften des Impulses unverändert bleiben. Diese werden von spektralen Phasen höherer Ordnung beeinflusst.

In Abbildung 3.1(d) wurde der Koeffizient der zweiten Ordnung $b_2 > 0$ gewählt. Das resultierende elektrische Feld im Zeitraum (Abbildung 3.1(e)) ist im Vergleich zu dem des Impulses mit flacher spektraler Phase deutlich verbreitert und weist eine deutlich verringerte Spitzenintensität auf. Weiterhin bewirkt die quadratische spektrale Phase $\Phi(\omega)$ (grüne Linie in Abbildung 3.1 (d)) eine ebenfalls quadratische zeitliche Phase $\Phi(t)$ (grüne Linie in Abbildung 3.1 (e)), weshalb nach Gleichung (3.17) die Momentanfrequenz $\omega_m(t)$ eine lineare Funktion der Zeit ist. Um dies

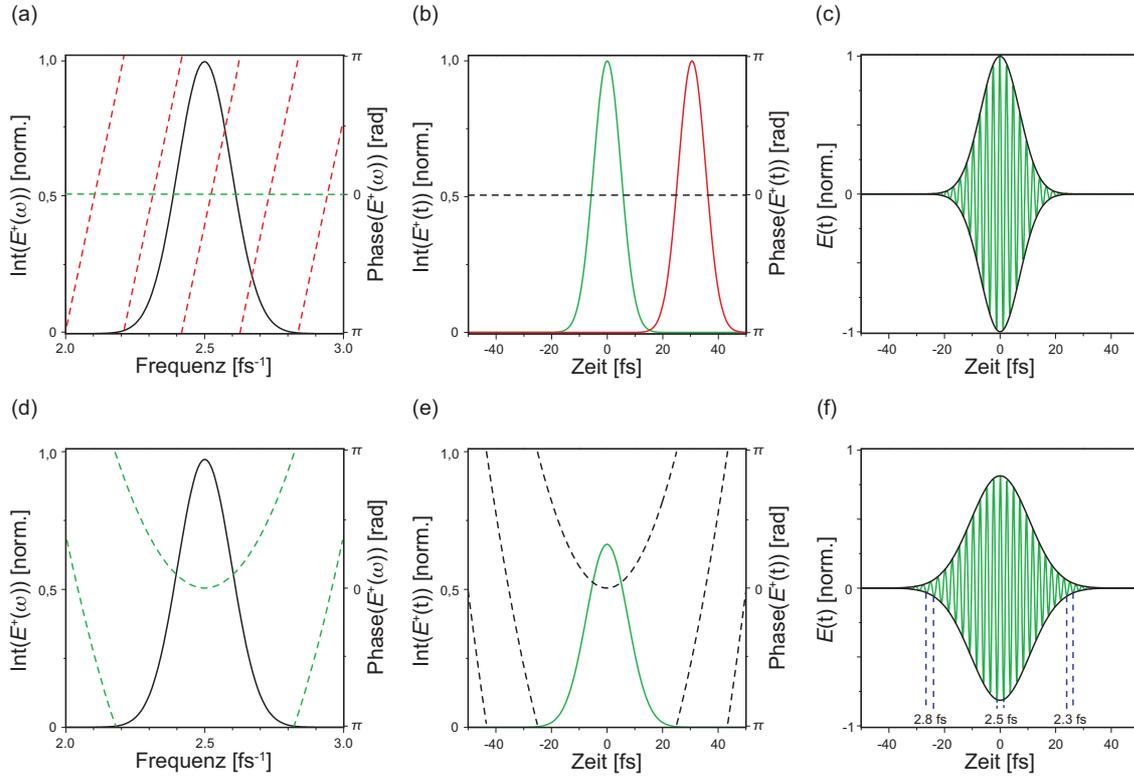


Abbildung 3.1: Beispiel zweier Laserpulse mit identischer spektraler Intensität $I(\omega)$ (schwarze Linie in (a) und (d)) und unterschiedlicher spektraler Phase $\varphi(\omega)$ (gestrichelte Linien in (a) und (d)). Der ursprüngliche, gaußförmige Impuls mit $\omega_0 = 2.5 \text{ fs}^{-1}$ und flacher Phase $\Phi(\omega) = 0$ ((a), gestrichelte, grüne Linie), ergibt einen bandbreitebegrenzten Laserpuls zentriert um $t = 0 \text{ fs}$ ((b), grüne Linie). (c) zeigt die Oszillationen des reellen zeitlichen Feldes und die Einhüllende $\pm 2A(t)$. Weiterhin ist der Effekt einer linearen spektralen Phase $\Phi(\omega) = 30 \text{ fs}(\omega - \omega_0)$ ((a), gestrichelte, rote Linie) dargestellt, die den Laserpuls um 30 fs verschiebt ((b), rote Linie). Die zeitliche Phase ((b), gestrichelte, schwarze Linie) ist in beiden Fällen Null, da die zeitliche Verschiebung keinen Einfluss auf die zeitliche Verteilung der spektralen Komponenten hat. Diese wird allerdings durch eine quadratische spektrale Phase $\Phi(\omega) = 0.5 \times 60 \text{ fs}^2(\omega - \omega_0)$ in (d) beeinflusst. Sie führt zu einer ebenfalls quadratischen zeitlichen Phase und einem längeren Laserpuls mit geringerer maximaler Intensität in (e). Der Anstieg der Momentanfrequenz mit der Zeit wird anhand des reellen elektrischen Feldes in (f) sichtbar.

zu verdeutlichen wurde in Abbildung 3.1(f) zu verschiedenen Zeiten die Dauer einer Schwingung mit der Momentanfrequenz eingezeichnet. Diese Schwingungsdauer nimmt ab, die Momentanfrequenz also zu, es handelt sich um einen positiv gechirpten Impuls (Up-Chirp). Für $b_2 < 0$ hätte man entsprechend eine negativ gechirpten Impuls erhalten.

Phasenterme höherer Ordnung führen zu komplizierteren Veränderungen der Zeit-Frequenzstruktur eines Laserpulses, die hier nicht näher analysiert werden sollen. Allerdings sei angemerkt, dass die spektrale Phase bei der Beschreibung geformter ultrakurzer Laserpulse von großer Bedeutung ist, da fast alle Experimente zur Impulsformung auf Variation der spektralen Phase beruhen.

Anhand der in Abbildung 3.1 vorgestellten Laserpulsen wird deutlich, dass Laserpulse mit identischen Spektrum abhängig von der spektralen Phase unterschiedliche Ausdehnung im Zeitraum haben können. So ist der Impuls mit flacher oder linearer spektralen Phase (Abbildung 3.1(b)) deutlich kürzer als der entsprechende Impuls mit quadratischer spektraler Phase (Abbildung 3.1(e)). Um diese Aussage quantifizieren zu können benötigt man Größen die ein Maß für die zeitliche und spektrale Breite eines Laserpulses angeben. In dieser Arbeit sollen dafür die Halbwertsbreiten („full width at half maximum“ (FWHM)) der spektralen und der zeitlichen Intensität

$$\sigma_\omega = \text{FWHM}[I(\omega)], \quad (3.25)$$

$$\sigma_t = \text{FWHM}[I(t)] \quad (3.26)$$

verwendet werden³. Da das elektrische Feld im Frequenzraum über die Fouriertransformation direkt mit dem elektrischen Feld im Zeitraum verknüpft ist, können die zwei in Gleichung (3.25) und (3.26) definierten Größen nicht unabhängig voneinander variiert werden. Es existiert vielmehr ein minimales Zeit-Bandbreiteprodukt $\sigma_\omega \sigma_t$ das nicht unterschritten werden kann:

$$\sigma_\omega \sigma_t \geq 2\pi c_B. \quad (3.27)$$

Der Parameter c_B hängt dabei von der vorliegenden Impulsform im Frequenzraum und der Definition von σ_ω und σ_t ab. Wenn diese wie in den Gleichungen (3.25) und (3.26) definiert sind, so ergibt sich $c_B = 4 \ln(2) / (2\pi) = 0,441$ im Falle eines gaußförmigen Spektrums. Für andere Intensitätsprofile ergeben sich andere Werte für c_B , so ist $c_B = 0,443$ für rechteckige Spektren, $c_B = 0,342$ für Spektren, die einen sech²-förmigen Intensitätsverlauf aufweisen und $c_B = 0,142$ für Spektren, die einer Lorentzkurve folgen [131, 133]. Das Zeit-Bandbreiteprodukt (3.27) kann analog zur Heisenbergschen Unschärferelation als Zeit-Frequenz-Unschärferelation interpretiert werden [12]. Ähnlich, wie es in der Quantenmechanik unmöglich ist, Ort und Impuls eines Teilchens beliebig genau zu bestimmen, bedingt eine genaue Zeitauflösung

³Diese Definition der spektralen und zeitlichen Breite ist nur dann sinnvoll, wenn die Intensität des betrachteten Laserpulses außerhalb der Halbwertsbreite rasch abfällt. Weist er hingegen Voroder Nachimpulse auf, so ist die aus der FWHM gewonnene Impulsdauer wenig verlässlich. Es gibt deshalb alternative Konzepte zur Definition von σ_ω und σ_t , die die Verteilung der kompletten Impulsenergie besser berücksichtigen [131, 132].

stets eine breite Ausdehnung im Frequenzraum und umgekehrt. Ist die Gleichheit in (3.27) erfüllt, so wird der Impuls bandbreitebegrenzt genannt. Es handelt sich dann um den bei gegebener spektraler Breite σ_ω kürzesten Laserpuls. Dies ist für jedes beliebige Spektrum $I(\omega)$ genau dann der Fall, wenn alle Koeffizienten b_j der Taylorreihe (3.11) für $j \geq 2$ gleich Null sind. Ebenso erhält man für einen gegebenen Zeitverlauf $I(t)$ genau dann das schmalste Spektrum, wenn in Gleichung (3.22) alle $a_j = 0$ für $j \geq 2$ sind. Der Beispielimpuls aus Abbildung 3.1(a) und (b) ist bandbreitebegrenzt und hat zudem noch eine flache zeitliche Phase $\varphi(t)$. Allerdings ist nicht jeder bandbreitebegrenzte Laserpuls gleichzeitig ungechirpt. Es kann im Gegenteil sogar gezeigt werden, dass für unsymmetrische Spektren (wie sie häufig in Experimenten erzeugt werden) der bandbreitebegrenzte Impuls stets einen Chirp, also eine mit der Zeit variierende Momentanfrequenz $\omega_m(t)$ aufweist [134, 135].

3.2 Kombinierte Zeit-Frequenzraumdarstellungen

Im vorangegangenen Abschnitt wurde gezeigt, dass ultrakurze Laserpulse sowohl im Frequenzraum als auch im Zeitraum beschrieben werden können. Die beiden Darstellungen sind äquivalent zueinander und durch die Fouriertransformation verbunden. Obwohl alle notwendigen Informationen zur Charakterisierung des Laserpulses schon in jeweils einer der beiden Darstellungen enthalten sind, unterscheiden sie sich hinsichtlich der Interpretierbarkeit. Während bei der Frequenzraumdarstellung die spektrale Intensität $I(\omega)$ direkt zugänglich ist, ist der Verlauf der zeitlichen Intensität $I(t)$ in der spektralen Phase $\Phi(\omega)$ versteckt und muss mittels der inversen Fouriertransformation berechnet werden. Für die Beschreibung im Zeitraum gilt das genaue Gegenteil: Hier ist der Zeitverlauf sofort intuitiv erfassbar und die Information über die spektrale Intensität in der zeitlichen Phase $\varphi(t)$ kodiert. Es ist somit wünschenswert eine Darstellung zu finden, die eine gleichzeitige und direkte Interpretation der zeitlichen und spektralen Eigenschaften eines Laserpulses erlaubt.

In der Signalverarbeitung wurden verschiedene Ansätze entwickelt um diese Anforderungen zu erfüllen. Für Signale, die nur langsam variieren, bietet sich die Darstellung in einem sogenannten Spektrogramm an [136–138]. Ein Spektrogramm ist eine Darstellung der Frequenzverteilung im Phasenraum. Das zeitliche Signal wird hierfür abschnittsweise einer Fourieranalyse unterworfen und das erhaltene Spektrum über dem entsprechenden Zeitabschnitt aufgetragen. Je kleiner der gewählte Zeitabschnitt ist, das heißt, je genauer die Zeitauflösung ist, desto schlechter ist die resultierende Auflösung im Spektralraum. Zudem ist es ein Problem, dass das Signal stets am Rand des Zeitfensters abgeschnitten und somit verfälscht wird. Zur Analyse ultrakurzer Laserpulse ist diese Methode somit nicht geeignet.

Dieses Problem wurde mit Einführung der Wavelet-Transformation [139, 140] und der Gabor-Transformation [141] gelöst, die im Gegensatz zur Fouriertransformation nicht unendlich ausgedehnte Sinusschwingungen, sondern spektral und zeitlich lokalisierte Funktionen, die sogenannten Wavelets, zur Analyse des Signals verwendet. Auch bei der in Kapitel 7 vorgestellten von Neumann-Darstellung handelt es

sich um eine bestimmte Form der Wavelet-Analyse. Es existiert tatsächlich eine unendliche Vielfalt von kombinierten Zeit-Frequenzdarstellungen, die alle mit einem einheitlichen Formalismus beschrieben werden können [142–144]. Jede einzelne weist in Hinblick auf die Beschreibung ultrakurzer Lichtimpulse unterschiedliche Vor- und Nachteile auf. In der Quantenoptik haben sich aus dieser Vielzahl der Möglichkeiten heraus zwei besondere Phasenraumdarstellungen, die Wigner- und die Husimi-Darstellung, durchgesetzt. Diese beiden, auch aus der Quantenmechanik bekannten Verteilungsfunktionen sollen nun im Folgenden vorgestellt und auf ihre besonderen Eigenschaften hin untersucht werden.

3.2.1 Wigner-Darstellung

Im Jahre 1932 führte Eugene Wigner die nach ihm benannte Darstellung zur Beschreibung quantenmechanischer Wellenfunktionen als quasiklassische Wahrscheinlichkeitsverteilungen im Orts-Impuls-Phasenraum ein [145]. Mit Hilfe der Wignerfunktion konnten viele Parallelen zwischen klassischer Mechanik und Quantenmechanik aufgedeckt und wichtige Eigenschaften von Wellenpaketen verdeutlicht werden. Benutzt man die Analogie zwischen Orts-Impuls-Phasenraum und Zeit-Frequenz-Phasenraum, so kann der Wigner-Formalismus auf die Beschreibung ultrakurzer Laserpulse übertragen werden [146–151]. Für die Wigner-Darstellung $W(E^+; \omega, t)$ eines elektrischen Feldes $E(\omega)$ ergibt sich dann [152, 153]:

$$W(E^+; t, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E^+(\omega + \Omega) \exp(2i\Omega t) E^{+*}(\omega - \Omega) d\Omega. \quad (3.28)$$

Ebenso erhält man aus dem zeitlichen elektrischen Feld $E(t)$:

$$W(E^+; t, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E^+(t + \tau) \exp(-2i\omega\tau) E^{+*}(t - \tau) d\tau. \quad (3.29)$$

Die Wignerdarstellung eines Signals enthält sämtliche Informationen⁴, die zu dessen eindeutiger Rekonstruktion⁵ notwendig sind [142]. Durch Umkehrung der Wigner-Transformation erhält man somit die elektrischen Felder $E^+(t)$ und $E^+(\omega)$ zurück:

$$E^+(t) = \frac{1}{E^{+*}(0)} \int_{-\infty}^{\infty} W\left(E^+; \frac{1}{2}t, \omega\right) \exp(i\omega t) d\omega \quad (3.30)$$

$$E^+(\omega) = \frac{1}{E^{+*}(0)} \int_{-\infty}^{\infty} W\left(E^+; t, \frac{1}{2}\omega\right) \exp(-i\omega t) dt. \quad (3.31)$$

⁴An dieser Stelle sei darauf verwiesen, dass strenger Informationserhalt unter Wigner-Transformation nur für kontinuierliche Signale auftritt.

⁵Die Rekonstruktion ist bis auf einen konstanten Phasenfaktor eindeutig.

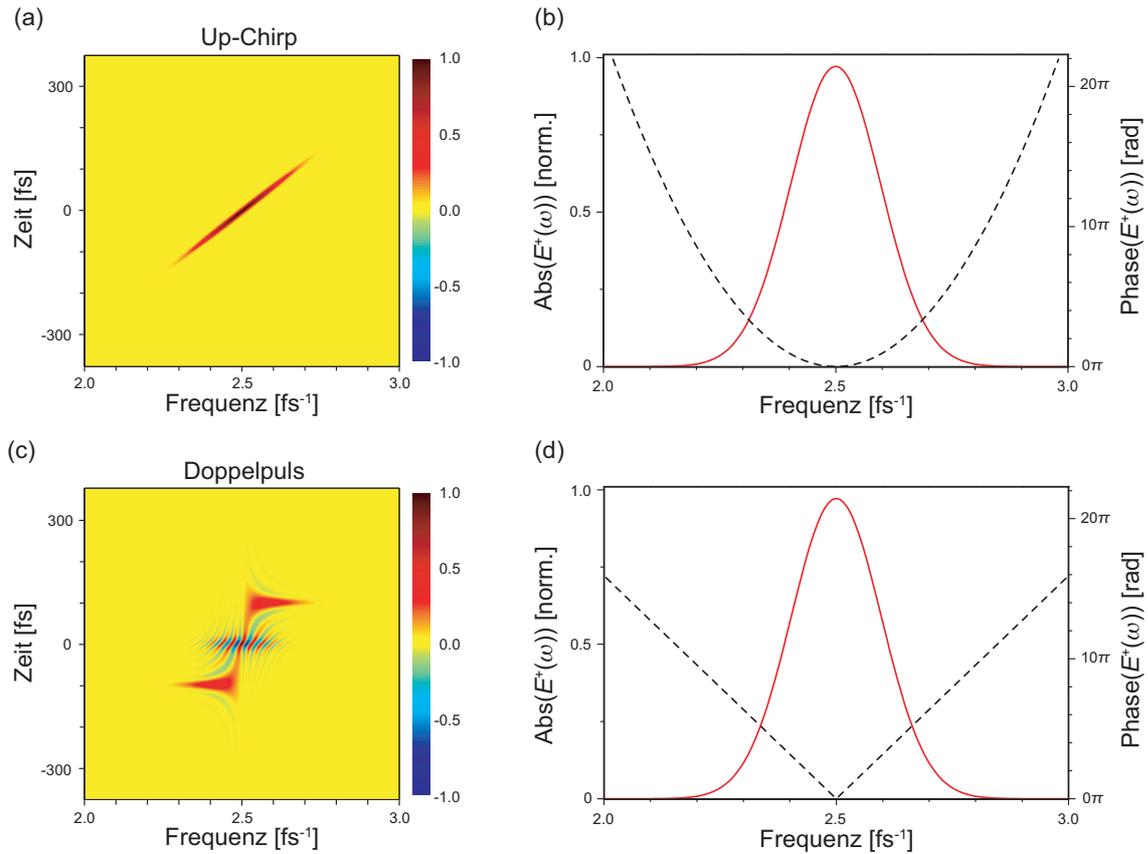


Abbildung 3.2: Wigner-Darstellung zweier Laserpulse: Abbildung (b) zeigt das Spektrum eines Laserpulses mit positiver quadratischer Phase $\Phi(\omega) = 300 \text{ fs}^2(\omega - \omega_0)^2$, woraus ein linearer positiver Chirp resultiert. Die zugehörige Wigner-Darstellung, in der dieser Chirp deutlich erkennbar ist, ist in (a) gezeigt. Als zweites Beispiel wurde ein zeitlicher und spektraler Doppelpuls (d), dessen Subimpulse durch lineare Phasen von $\Phi(\omega < \omega_0) = -100 \text{ fs}(\omega - \omega_0)$ und $\Phi(\omega > \omega_0) = 100 \text{ fs}(\omega - \omega_0)$ erzeugt wurden, gewählt. Seine Wigner-Darstellung (c) weist neben der Doppelpulsstruktur zwischen den beiden Subimpulsen starke Oszillationen von positiven auf negative Werte auf.

Die Wigner-Transformation ordnet jedem Punkt (ω, t) des Phasenraumes einen reellen Wert $W(E^+; t, \omega)$ zu. Da diese Werte aber auch negativ sein können, ist eine direkte Interpretation als Wahrscheinlichkeitsamplitude nicht möglich. Sie wird deshalb als Quasi-Wahrscheinlichkeitsverteilung bezeichnet. Wie man in von Gleichung (3.29) erkennen kann, ist der Wert eines Koeffizienten der Wigner-Darstellung in einem Punkt des Phasenraumes (ω, t) nicht nur von unmittelbar benachbarten Punkten abhängig, sondern, zumindestens theoretisch, von jedem einzelnen Punkt des kompletten Phasenraumes.

Als einfaches Beispiel ist in Abbildung 3.2(a) die Wignerdarstellung eines positiv gechirpten Laserpulses gegeben. Das dazugehörige elektrische Feld $E^+(\omega)$ ist in Abbildung 3.2(b) in Amplitude (rote Linie) und spektraler Phase (gestrichelte schwarze Linie) gezeigt. In der, ausschließlich positive Werte aufweisenden Wignerfunktion,

ist die lineare Zunahme der Momentanfrequenz deutlich zu erkennen.

Schwieriger gestaltet sich die Interpretation der Wigner-Darstellungen komplexerer Laserpulse. Dies wird in Abbildung 3.2 an Hand eines spektralen und zeitlichen Doppelimpulses demonstriert. An denjenigen Punkten im Phasenraum, die der Zentralfrequenz und der Zeitposition der beiden Subimpulse entsprechen, weist die Wignerfunktion (Abbildung 3.2(c)) deutliche Maxima auf. Zwischen diesen Maxima, in Bereichen verschwindender spektraler Intensität oszilliert sie jedoch stark zwischen positiven und negativen Werten. In diesen Oszillationen ist die Information über die relative Phase zwischen den beiden getrennten Subimpulsen enthalten. Sie verhindern, dass die Momentanfrequenz genauer gemessen werden kann, als es die Heisenbergsche Unschärferelation zulässt.

Trotz dieser unphysikalischen Oszillationen lassen sich viele Informationen aus der Wignerdarstellung eines Laserpulses gewinnen. So kann beispielsweise die Momentanfrequenz direkt aus der Wignerdarstellung bestimmt werden:

$$\omega_m(t) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \omega W(E^+; t, \omega) d\omega}{\int_{-\infty}^{\infty} W(E^+; t, \omega) d\omega}. \quad (3.32)$$

Des Weiteren erhält man den Intensitätsverlauf $I(\omega)$ oder $I(t)$ durch Integrieren über die jeweils konjugierte Variable:

$$I(\omega) = 2\varepsilon_0 c_0 n \int_{-\infty}^{\infty} W(E^+; t, \omega) dt, \quad (3.33)$$

$$I(t) = 2\varepsilon_0 c_0 n \int_{-\infty}^{\infty} W(E^+; t, \omega) d\omega. \quad (3.34)$$

Der Unschärferelation ist hierbei Genüge getan, da nach der Integration keinerlei Information über die jeweils komplementäre Variable mehr vorliegt. Die Wignerdarstellung ist somit eine kombinierte Zeit-Frequenzraumdarstellung, die es erlaubt die wesentlichen Eigenschaften ultrakurzer Laserpulse direkt zu erschließen.

3.2.2 Husimi-Darstellung

Ein Nachteil der Wigner-Darstellung ist es, dass sie nicht als Wahrscheinlichkeitsverteilung geeignet ist, da sie negative Werte annimmt. Dies kann dadurch behoben werden, dass man sie mit einer zweidimensionalen Gaußfunktion glättet, deren Halbwertsbreiten das minimale Bandbreiteprodukt $\sigma_t \sigma_\omega = 4 \ln 2$ erfüllen [143, 153, 154]. Eine solche Gaußfunktion im Phasenraum entspricht genau der Intensitätsverteilung eines bandbreitebrenzten Laserpulses und erhält deshalb bei der Glättung der Wigner-Darstellung die maximale physikalisch sinnvolle Auflösung. Die so definierte

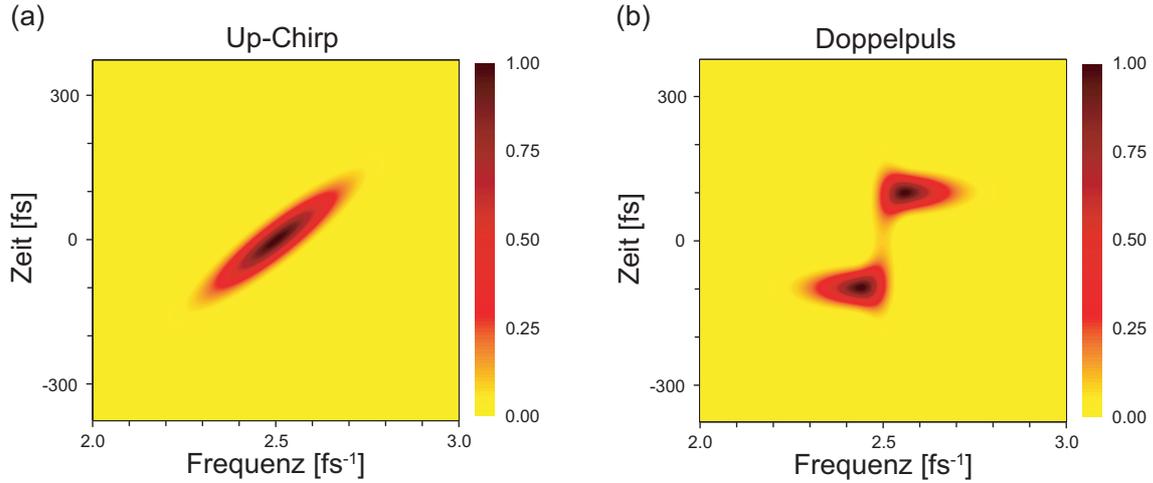


Abbildung 3.3: Husimi-Darstellung der Laserpulse aus Abbildung 3.2: Deutlich erkennbar ist die Verbreiterung der Impulsstrukturen relativ zur Wigner-Darstellung, die durch die Glättung mit der Gaußfunktion verursacht wird. Diese entfernt auch die Oszillationen zwischen den beiden Subimpulsen in (b).

Husimi-Darstellung [146, 147, 155–157]

$$H(E^+; t, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} W(E^+; \tau, \Omega) \exp \left[-\frac{4 \ln 2}{\sigma_t^2} (t - \tau)^2 - \frac{4 \ln 2}{\sigma_\omega^2} (\omega - \Omega)^2 \right] d\tau d\Omega \quad (3.35)$$

nimmt ausschließlich positive Werte an und ist beschränkt und eignet sich folglich als Wahrscheinlichkeitsdichte. Tatsächlich entspricht $H(E^+; t, \omega)$ der Wahrscheinlichkeit, ein Photon aus dem Frequenzbereich $\omega \pm \sigma_\omega$ und dem Zeitintervall $t \pm \sigma_t$ zu detektieren. Allerdings erfüllt die Husimi-Darstellung die Gleichungen (3.34) und (3.33) nicht, vielmehr liefert die Integration über die Zeit oder die Frequenz eine Faltung des jeweiligen Intensitätsverlaufs mit einer Gaußfunktion [158, 159].

Da nur das Produkt $\sigma_\omega \sigma_t$ festgelegt ist, existiert eine ganze Schar von Husimi-Funktionen, die zur Beschreibung ultrakurzer Laserpulse geeignet wären. In dieser Arbeit sollen die Parameter σ_ω und σ_t jedoch so gewählt werden, dass die zeitliche und spektrale Auflösung, gemessen im Verhältnis zum betrachteten Zeit- bzw. Frequenzbereich, gleich sind.

In Abbildung 3.3 ist die Husimi-Darstellung der zwei Laserpulse aus Abbildung 3.2 gezeigt. Bedingt durch die Unschärfe der glättenden Gaußfunktion sind die auftretenden Strukturen im Vergleich zur Wigner-Darstellung deutlich verbreitert. Außerdem treten nun die starken Oszillationen aus Abbildung 3.2(c) nicht mehr auf. Stattdessen kann man nun in Abbildung 3.3(b) die durch zeitliches Verschieben der zwei Hälften des Spektrums entstandene Doppelpulsstruktur deutlich erkennen.

Ursprünglich wurde die Husimi-Darstellung nicht als geglättete Wigner-Darstellung sondern auf direktem Wege als Phasenraumdarstellung in der Quantenmechanik

definiert [155]. Dazu wird die Wellenfunktion in eine Basis aus kohärenten Zuständen, d.h. gaußförmigen Wellenpaketen mit minimaler Orts-Impuls-Unschärfe, entwickelt [12]. Diese Basis wird von Neumann-Basis [160] genannt und in Kapitel 7 ausführlich beschrieben. Schreibt man diese zweidimensionale Basis als Funktion der Frequenz ω und der Zeit t , so entsprechen die Basisfunktionen bandbreitebegrenzten Laserpuls $\alpha_{\omega t}(\omega')$, die um den Phasenraumpunkt (ω, t) zentriert sind. Die Husimi-Darstellung $H(E^+; t, \omega)$ eines Laserpulses ist dann das Betragsquadrat der Projektion des elektrischen Feld $E^+(\omega)$ auf diese Phasenraumbasis:

$$H(E^+; t, \omega) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E^{+*}(\omega') \alpha_{\omega t}(\omega') d\omega' \right|^2 \quad (3.36)$$

$$\alpha_{\omega t}(\omega') = \left(\frac{8 \ln 2}{\pi \sigma_\omega^2} \right)^{\frac{1}{4}} \exp \left[-\frac{4 \ln 2}{\sigma_\omega^2} (\omega' - \omega)^2 - it(\omega' - \omega) \right] \quad (3.37)$$

Durch Verwendung der Fouriertransformierten $\alpha_{\omega t}(t')$ der Basisfunktionen kann die Husimi-Darstellung des zeitlichen Signal $E^+(t)$ analog erhalten werden:

$$H(E^+; t, \omega) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E^{+*}(t') \alpha_{\omega t}(t') dt' \right|^2 \quad (3.38)$$

$$\alpha_{\omega t}(t') = \left(\frac{8 \ln 2}{\pi \sigma_t^2} \right)^{\frac{1}{4}} \exp \left[-\frac{4 \ln 2}{\sigma_t^2} (t' - t)^2 - it'\omega \right] \quad (3.39)$$

Die Halbwertsbreiten der den Basisfunktionen entsprechenden gaußförmigen Laserpulse erfüllen das Bandbreiteprodukt $\sigma_\omega \sigma_t = 8 \ln 2$ und sind relativ zueinander frei wählbar. Wie weiter oben schon erklärt, sollen sie hier jedoch so bestimmt werden, dass die zeitliche der spektralen Auflösung entspricht⁶.

Bei der Behandlung der Wigner-Darstellung in Abschnitt 3.2.1 wurde gezeigt, dass diese umkehrbar ist und somit alle Informationen über den dargestellten Laserpuls enthält. Diese Information geht beim Glätten mit der Gaußfunktion nicht verloren, tatsächlich ist sogar eine komplette Formulierung der Quantenmechanik unter ausschließlicher Verwendung der Husimi-Darstellung möglich [156]. Da die Basis der kohärenten Zustände extrem überkomplett ist, ist die gesamte Information sogar schon in den Diagonalelementen der Darstellung enthalten [161, 162]. Allerdings gibt es keine geschlossene Formel zur Umkehrung der Husimi-Transformation, eine direkte Rekonstruktion des Signals und insbesondere der Phase des Signals somit nicht möglich [162].

Abschließend sei noch angemerkt, dass es zahlreiche experimentelle Techniken zur Impulscharakterisierung gibt, die darauf beruhen zeit- und frequenzabhängige Größen vermessen, aus denen anschließend das komplette elektrische Feld rekonstru-

⁶Das hier verwendete Bandbreiteprodukt unterscheidet $\sigma_\omega \sigma_t = 8 \ln 2$ sich vom dem für die Glättung der Wignerfunktion verwendeten $\sigma_\omega \sigma_t = 4 \ln 2$ in einem Faktor 2. Der Grund hierfür ist, das ersteres der Bedingung für Amplituden und letzteres der für Intensitäten entspricht.

iert werden kann. Die so erfassten Daten können als kombinierte Zeit-Frequenz-Darstellung aufgefasst werden. Hierbei ist besonders die Methode der frequenz aufgelösten Kreuzkorrelation („cross-correlation frequency-resolved optical gating“, X-FROG) zu erwähnen, die der Husimi-Darstellung sehr ähnlich ist. Für eine detailliertere Beschreibung sei auf Abschnitt 4.2 verwiesen.

Kapitel 4

Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse

Ultrakurze Laserpulse bilden die Basis aller in dieser Arbeit durchgeführten Experimente. Deshalb wird in Abschnitt 4.1 zunächst kurz erklärt, wie sie experimentell erzeugt werden. Wie man in Kapitel 3 gesehen hat, können solche Impulse auch bei gleicher spektraler Intensität durchaus unterschiedliche Zeitverläufe aufweisen. Aus diesem Grund wurden zahlreiche Verfahren wie Autokorrelationsmessungen, FROG oder spektrale Interferenz entwickelt, um die vorliegenden Laserpulse genau zu charakterisieren. Sie werden in Abschnitt 4.2 nacheinander vorgestellt und hinsichtlich ihrer Vor- und Nachteile untersucht.

4.1 Femtosekunden-Lasersystem

Grundlage aller Impulsformungsexperimente ist das Lasersystem, mit dem die Femtosekunden-Laserpulse erzeugt werden. Das von uns verwendete System besteht aus zwei Stufen, dem Oszillator und dem Verstärker und ist in Abbildung 4.1 schematisch dargestellt. Der von einem Nd:YVO₄-Laser (Coherent Verdi V6) bei einer Wellenlänge von 532 nm gepumpte Titan-Saphir-Oszillator [163] liefert unter Ausnutzung des Kerr-Linsen-Effektes, Laserpulse von 60 fs Impulsdauer bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm und mit einer spektralen Halbwertsbreite von etwa 16 nm. Diese mit einer hohen Repetitionsrate von 90 MHz erzeugten Einzelimpulse haben eine Impulsenergie von etwa 3 nJ, die für die meisten Experimente unzureichend ist.

In einem nach dem Prinzip der „Chirped Pulse Amplification“ (CPA) [164] arbeitenden Verstärkersystem wird die Energie der Einzelimpulse deshalb deutlich erhöht. Dazu werden die Impulse im Strecker vom Öffner-Typ [165, 166] durch Aufprägen eines positiven Chirps zunächst zeitlich auf circa 120 ps verlängert. Dies sorgt dafür, dass die Intensität über den gesamten Verlauf sehr gering ist und so bei der anschließenden Verstärkung im regenerativen Verstärker die Zerstörschwelle der einzelnen

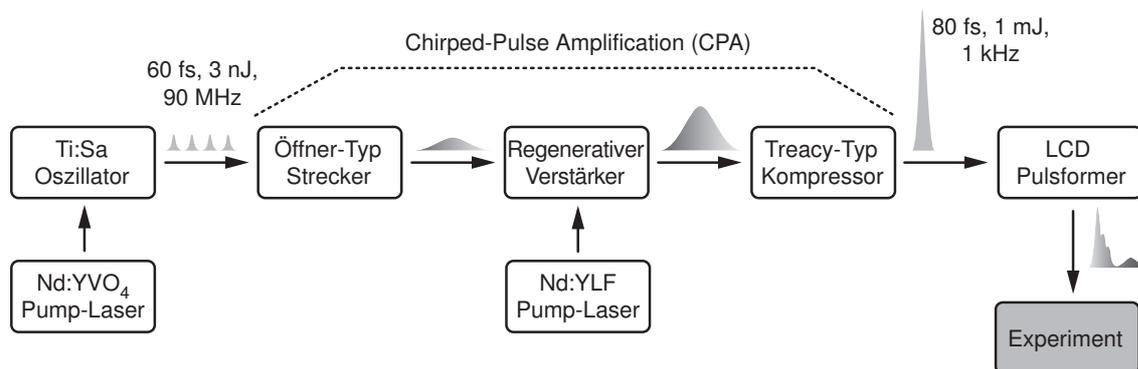


Abbildung 4.1: Das Femtosekunden-Lasersystem. Der Oszillator produziert kurze, energieweiche Laserpulse. Im Strecker werden diese zeitlich verlängert, um zu verhindern, dass bei der anschließenden Verstärkung im regenerativen Verstärker die Zerstörschwelle der Optiken erreicht wird. Zum Abschluss gelangen die Impulse in den Kompressor, der sie zeitlich wieder komprimiert. Somit stehen für die Experimente kurze, intensive Laserpulse mit einer Impulsenergie von 1 mJ, einer Repetitionsrate von 1 kHz und einer Zentralwellenlänge von 800 nm zur Verfügung.

Optiken nicht erreicht wird. Das mit einem zweiten Nd:YVO₄-Laser (Coherent Evolution 15, 10 W bei 1 kHz und 537 nm) gepumpte System erhöht die spektrale Intensität selektierter Impulse um einen Faktor größer als 10^5 . Der Gitterkompressor vom Treacy-Typ [166, 167] prägt dem verstärkten Laserpuls anschließend einen negativen Chirp auf, um eine zeitliche Verkürzung der Impulse zu bewirken. Schließlich liefert das Lasersystem Impulse von 80 fs Impulsdauer, 800 nm Zentralwellenlänge und 1 mJ Impulsenergie bei einer Repetitionsrate von 1 kHz. Die Verlängerung um 20 fs entsteht durch nichtlineare Beiträge bei der Verstärkung, die eine Verschmälerung des Spektrums von 16 nm auf etwa 12 nm Halbwertsbreite verursachen. Diese Impulse werden üblicherweise für die Experimente verwendet. Für die Tests zur Impulsformung in Kapitel 8 wurde zu Gunsten größerer Bandbreite jedoch auf Verstärkung verzichtet, da auch die Intensität des Oszillators zur Charakterisierung der geformten Impulse hinreichend hoch ist.

4.2 Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse

Femtosekundenlaserpulse gehören mit zu den kürzesten von Menschen experimentell kontrollierbaren Ereignissen [132] und sind deutlich kürzer als die Zeitaufösung auch der schnellsten elektronischen Detektoren. Zur ihrer Charakterisierung benötigt man Ereignisse von der selben Zeitdauer, wie zum Beispiel einen weiteren ultrakurzen Laserpuls. Hierbei hat man die Wahl, den Laserpuls mit sich selbst oder mit einem bekannten Referenzimpuls zu analysieren. Im folgenden Abschnitt sollen einige der zahlreichen hierzu entwickelten Techniken kurz vorgestellt werden.

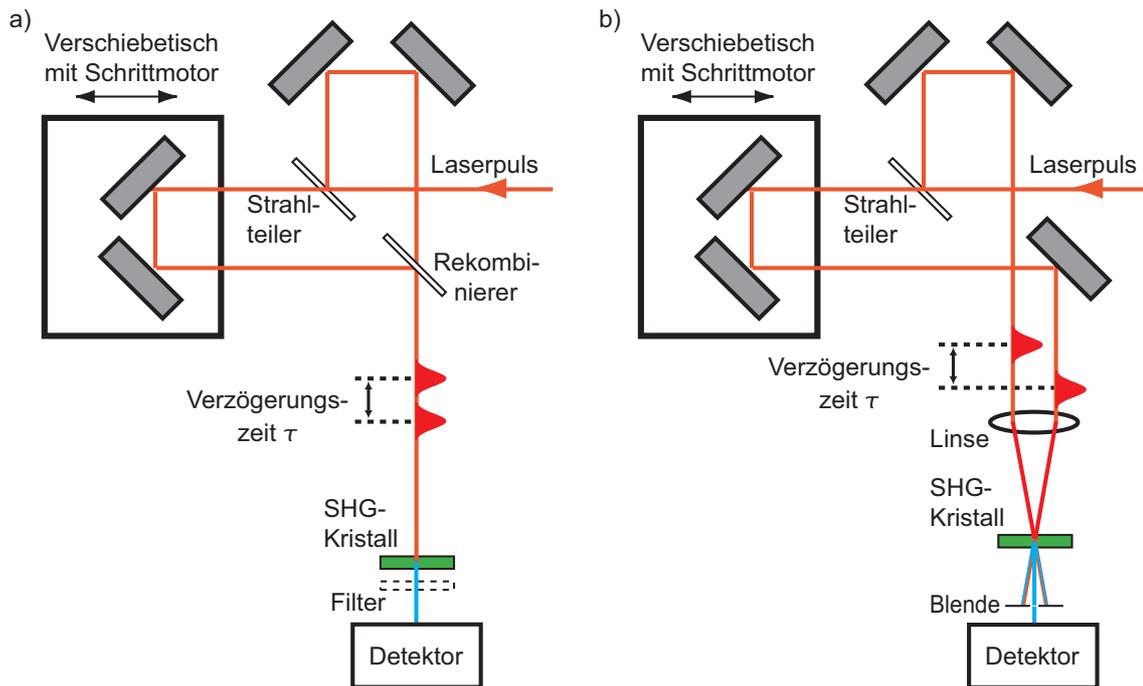


Abbildung 4.2: Schematischer Aufbau zur Messung (a) einer interferometrischen Autokorrelation oder (b) einer Intensitätsautokorrelation eines Laserpulses. Am Detektor wird das jeweilige Signal in Abhängigkeit der Verzögerungszeit τ aufgenommen. Ersetzt man den Detektor durch ein Spektrometer, können FROG-Traces aufgenommen werden.

4.2.1 Autokorrelation

Wie schon erwähnt, beruhen alle gängigen Verfahren zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse auf der Überlagerung des zu charakterisierenden Impulses mit einem zweiten Impuls, der entweder eine Kopie des ersten (Autokorrelation) oder aber auch ein gänzlich anderer Impuls (Kreuzkorrelation) sein kann. Die notwendige Zeitauflösung von einigen wenigen Femtosekunden wird dadurch erreicht, dass die zwei Impulse, wie in Abbildung 4.2 dargestellt, unterschiedliche Arme eines Interferometers durchlaufen und ihr Abstand durch Verlängern oder Verkürzen eines der beiden Interferometerarme eingestellt werden kann. Auf Grund des relativen Wegunterschiedes trifft der zweite Impuls am Ort der Rekombination erst nach einer Verzögerungszeit τ ein, die unter Verwendung der Lichtgeschwindigkeit c_0 exakt berechnet werden kann. In Abbildung 4.2 sind zwei verschiedene Arten einen Autokorrelator aufzubauen gezeigt. Abbildung 4.2(a) zeigt einen kollinearen Aufbau zur Messung von interferometrischen Autokorrelationen.

Verzichtet man auf den eingezeichneten Kristall zur Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG-Kristall), erhält man am Detektor die interferometrische Autokorre-

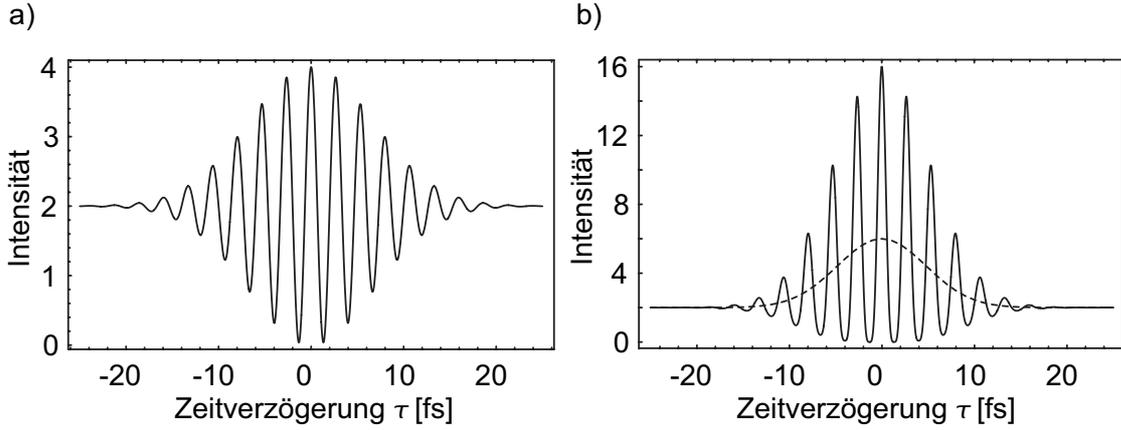


Abbildung 4.3: Autokorrelation eines bandbreitebegrenzten Laserpulses mit 8 fs Länge und einer Zentralfrequenz von 2.35 fs^{-1} : (a) Interferometrische Autokorrelation erster Ordnung. Der Signal zu Untergrund-Kontrast beträgt 2:1. (b) Interferometrische Autokorrelation zweiter Ordnung (schwarze Linie). Durch die Ausnutzung der nichtlinearen Summenfrequenzbildung ist ein Signalkontrast von 8:1 erreichbar. Die gestrichelte, schwarze Linie gibt den Verlauf der Intensität an, wenn die Interferenzen ausgemittelt werden. Der Signalkontrast verringert sich auf 3:1.

lation erster Ordnung:

$$\begin{aligned}
 I_1(\tau) &\propto \int_{-\infty}^{\infty} |E^+(t) + E^+(t - \tau)|^2 dt \\
 &= 2 \int_{-\infty}^{\infty} |E^+(t)|^2 dt + 2 \int_{-\infty}^{\infty} E^+(t) E^+(t - \tau) dt.
 \end{aligned} \tag{4.1}$$

Der erste Term in Gleichung (4.2) ist unabhängig von der Verzögerungszeit τ und bildet einen konstanten Untergrund auf dem gemessenen Signal (siehe Abbildung 4.3(a)). Er entspricht der Intensität, die gemessen wird, wenn die beiden Laserpulse getrennt voneinander auf den Detektor auftreffen. Der zweite Term beschreibt die Interferenz, die bei sich überlagernden Impulsen gemessen werden kann. In seinem Maximum bei $\tau = 0$ entspricht er dem ersten Term, weshalb der beste erreichbare Kontrast des Messsignals 2:1 beträgt. Um das Kontrastverhältnis zu verbessern muss lediglich, wie in Abbildung 4.2(a) zu sehen, ein SHG-Kristall in den rekombinierten Strahl eingebracht werden. Das gemessene Signal

$$I_2(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} |[E^+(t) + E^+(t - \tau)]^2|^2 dt, \tag{4.2}$$

ist proportional zum Betragsquadrat des resultierenden elektrischen Feldes und wird interferometrische Autokorrelation zweiter Ordnung genannt. Ähnlich wie in Gleichung (4.1) erhält man bei der Berechnung des Integrals verschiedene Terme, die

die Beiträge der verschiedenen elektrischen Felder zum Signal beschreiben. Von besonderem Interesse ist folgender Term, der lediglich vom Produkt der Intensitäten der beiden Teilstrahlen abhängt und Intensitätsautokorrelation genannt wird:

$$I_{IAC} \propto \int_{-\infty}^{\infty} I(t) I(t - \tau) dt. \quad (4.3)$$

Eine interferometrische Autokorrelation zweiter Ordnung ist in Abbildung 4.3(b) dargestellt. Hier beträgt der maximale Kontrast zwischen Signal und Untergrund 8:1 und wird bei einer Verzögerungszeit von $\tau = 0$ erreicht. Die entsprechende Intensitätsautokorrelation wurde in Abbildung 4.3(b) als gestrichelte schwarze Linie eingezeichnet. Ihr Signalkontrast ist mit 3:1 deutlich geringer als der der Intensitätsautokorrelation, zudem weist sie keinerlei Interferenzstrukturen mehr auf. Man erhält dieses Signal indem man die interferometrische Autokorrelation zweiter Ordnung mit einem Tiefpassfilter glättet. In einem nicht kollinearen Aufbau (Abbildung 4.2(b)) hingegen kann die Intensitätsautokorrelation direkt gemessen werden. Da die Beiträge zum Signal, die aus jeweils einem der beiden Teilstrahlen bestehen, sich in dessen Richtung ausbreiten, tritt das kooperative Signal $I_{IAC}(\tau)$ auf der Winkelhalbierenden der zwei Strahlen aus und kann somit durch eine Blende von den anderen Beiträgen getrennt werden. Die so gemessene Intensitätsautokorrelation ist untergrundfrei und erlaubt es, die zeitliche Dauer des vermessenen Laserpulses abzuschätzen. Dessen zeitliche Halbwertsbreite σ_t steht in direktem Zusammenhang mit der Halbwertsbreite σ_{IAC} der Intensitätsautokorrelation. Für ein gaußförmiges Intensitätsprofil ergibt sich beispielsweise $\sigma_t = \sigma_{IAC}/\sqrt{2}$ oder $\sigma_t = \sigma_{IAC}/1,54$ für eines, das einer sech²-Verteilung folgt. Da verschiedene elektrische Felder dieselbe Intensitätsautokorrelation aufweisen können ist es allerdings nicht möglich, das elektrische Feld in Amplitude und Phase aus dieser Messung zu rekonstruieren.

Die interferometrische Autokorrelation zweiter Ordnung enthält hingegen wesentlich mehr Information über das sie erzeugende Feld und es wurden Algorithmen entwickelt, dieses zu rekonstruieren [168–170]. Jedoch ist auch hier das Ergebnis noch immer mehrdeutig [132, 171], weshalb für komplexere Impulsformen andere Charakterisierungsmethoden verwendet werden müssen.

4.2.2 Frequenz aufgelöste Autokorrelation

Abgesehen von einigen meist unbedeutenden Mehrdeutigkeiten enthalten frequenz aufgelöste Autokorrelationen die gesamte Information über das zu charakterisierende elektrische Feld. Die einfachste Variante ist SHG-FROG („second-harmonic generation - frequency resolved optical gating“) [172–174], die wie die Messung der Intensitätsautokorrelation auf einem Prozess zweiter Ordnung, der Summenfrequenzerzeugung, beruht. Da alle anderen FROG-Varianten auf Grund von nichtlinearen Prozessen dritter Ordnung funktionieren [132], ist SHG-FROG zudem die empfindlichste dieser Methoden.

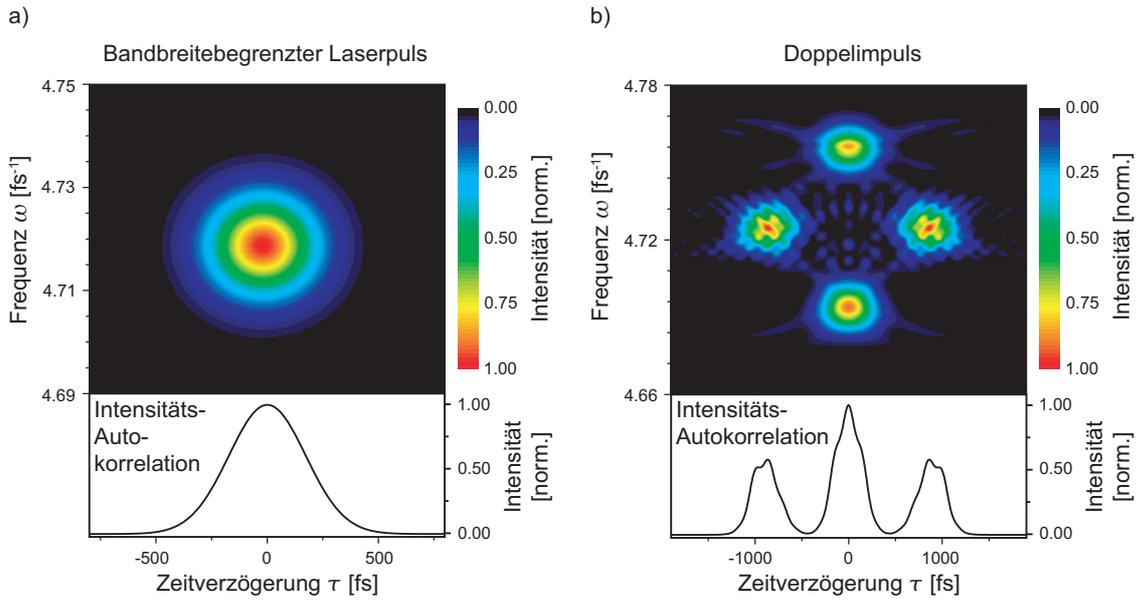


Abbildung 4.4: Beispiele für SHG-FROG-Traces. (a) Ein bandbreitebegrenzter Laserpuls mit Zentralfrequenz $2,36 \text{ fs}^{-1}$ und 280 fs Impulsdauer. Durch Integration über die Frequenz erhält man die entsprechende Intensitätsautokorrelation. (b) Doppelimpuls mit Teilimpulsen bei $(-430 \text{ fs}; 2,35 \text{ fs}^{-1})$ und $(430 \text{ fs}; 2,38 \text{ fs}^{-1})$. Die SHG-FROG-Trace zeigt deutlich, dass die Teilimpulse sowohl zeitlich als auch spektral gegeneinander verschoben sind. Die Intensitätsautokorrelation hingegen offenbart lediglich die Doppelimpulsstruktur im Zeitraum.

Zur Messung einer frequenz aufgelösten Autokorrelation muss im Versuchsaufbau aus Abbildung 4.2(b) lediglich ein Spektrometer als Detektor verwendet werden. Die spektral aufgelöste Intensitätsautokorrelation wird in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit τ aufgenommen und in Form einer zweidimensionalen „Trace“ dargestellt. Ist das elektrische Feld gegeben, so lässt sich diese FROG-Trace folgendermaßen berechnen:

$$I_{FROG}(\omega, \tau) \propto \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E_{sig}(t, \tau) \exp(-i\omega t) dt \right|^2. \quad (4.4)$$

Wobei $E_{sig}(t, \tau)$ das Produkt des elektrischen Feldes mit seiner um die Zeit τ verzögerten Kopie ist:

$$E_{sig}(t, \tau) = E^+(t, \tau) E^+(t - \tau). \quad (4.5)$$

Zwei simulierte Beispiele für SHG-FROG-Traces sind in Abbildung 4.4 zu sehen. Der bandbreitebegrenzte Laserpuls in Abbildung 4.4(a) resultiert in einer regelmäßigen, elliptischen Struktur in der FROG-Trace. Die im unteren Bildteil abgebildete Intensitätsautokorrelation hat einen gaußförmigen Verlauf und wurde durch Integration über die Frequenz erhalten. Ein komplexerer Impuls ist in Abbildung 4.4(b) dargestellt. Er besteht aus zwei Teilimpulsen, die unterschiedliche Zentralfrequenzen besitzen und untereinander einen zeitlichen Abstand von 860 fs haben. In der

FROG-Trace manifestiert sich dies in vier verschiedenen Maxima. Die zwei Maxima bei 0 fs entstehen wenn die Teilimpulse mit ihrer eigenen Kopie überlagern. Die Maxima bei 860 fs und bei -860 fs hingegen entsprechen der Überlagerung von je zwei unterschiedlichen Teilimpulsen. Man beachte, dass man in der dazugehörigen Intensitätsautokorrelation zwar deutlich die zeitliche Doppelimpulsstruktur erkennt, nicht aber, dass die Teilimpulse unterschiedliche Zentralfrequenzen aufweisen.

Wie man an Hand von Gleichung (4.4) unter Berücksichtigung von Gleichung (4.5) erkennt, ist $I_{FROG}(\omega, \tau) = I_{FROG}(\omega, -\tau)$, das heißt, die FROG-Trace ist symmetrisch unter Zeitumkehr. Die direkte Konsequenz daraus ist, dass man aus ihr die Richtung der Zeitachse und damit das Vorzeichen der spektralen Phase nicht bestimmen kann. Um dieses Vorzeichen zu bestimmen wird zusätzliche Information benötigt. Diese kann zum Beispiel in definiert erzeugten, kleinen Nachimpulsen bestehen, die mit in der FROG-Trace erscheinen, oder aber – bei Benutzung eines Impulsformers – auch im Vergleich der angelegten spektralen Phase mit der spektralen Phase des rekonstruierten Signals.

Um das elektrische Feld $E^+(t)$ aus der FROG-Trace zu erhalten, wird ein iterativer Algorithmus benutzt, der die Abweichungen zwischen einer aus einem vorgeschlagenen elektrischen Feld berechneten und der experimentellen FROG-Trace minimiert. Um diese Optimierung effizienter zu gestalten, empfiehlt es sich, das Problem als eine zweidimensionale Phasenraumrekonstruktion umzuformulieren. Dazu wird zunächst $E_{sig}(t, \tau)$ durch Anwendung der Fouriertransformation in $E_{sig}(t, \Omega)$ umgeformt:

$$E_{sig}(t, \Omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E_{sig}(t, \tau) \exp(-i\Omega\tau) d\tau. \quad (4.6)$$

Nach Anwendung der inversen Fouriertransformation auf (4.6) wird der erhaltene Ausdruck für $E_{sig}(t, \tau)$ in Gleichung (4.4) eingesetzt:

$$I_{FROG}(\omega, \tau) \propto \frac{1}{2\pi} \left| \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E_{sig}(t, \Omega) \exp(-i\omega t + i\Omega\tau) dt d\Omega \right|^2. \quad (4.7)$$

Die FROG-Trace kann also auch zweidimensionale Fouriertransformierte von $E_{sig}(t, \Omega)$ interpretiert werden [132, 175]. Zur iterativen Lösung von Gleichung (4.7) stehen verschiedene Algorithmen zur Verfügung [132, 176, 177], die ausgehend von einem beliebigen elektrischen Feld nach und nach zur richtigen Lösung konvergieren. Die Abweichung zwischen der gegebenen FROG-Trace und der aus dem rekonstruierten elektrischen Feld berechneten wird FROG-Fehler genannt. Idealerweise wird dieser im Laufe einer Rekonstruktion verschwindend gering und man erhält schließlich ein optimales $E_{sig}(t, \Omega)$. Setzt man nun $\Omega = 0$, so ergibt sich mit Gleichung (4.6)

$$E_{sig}(t, \Omega = 0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E_{sig}(t, \tau) d\tau, \quad (4.8)$$

und durch Einsetzen von Gleichung (4.5) und anschließender Substitution $\tau' = t - \tau$ endlich einen linearen Zusammenhang zwischen $E_{sig}(t, \Omega = 0)$ und dem gesuchten elektrischen Feld $E^+(t)$:

$$E_{sig}(t, \Omega = 0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} E^+(t) \int_{-\infty}^{\infty} E^+(\tau') d\tau'. \quad (4.9)$$

Mathematisch betrachtet führt die Rekonstruktion eines elektrischen Feldes aus seiner FROG-Trace bis auf einige aus praktischer Sicht triviale Mehrdeutigkeiten immer zum Erfolg. So kann, wie weiter oben schon erklärt, die Richtung der Zeitachse nicht bestimmt werden. Weiterhin enthält eine FROG-Messung keinerlei Informationen über die absolute Phase, da das Signal nur von der Intensität des elektrischen Feldes abhängt. Zudem ist der Nullpunkt der Zeitachse nicht festgelegt, weswegen das rekonstruierte elektrische Feld eine zusätzliche lineare spektrale Phase aufweisen kann. Am problematischsten ist jedoch, dass es mit dem FROG-Algorithmus nicht möglich ist, die relative Phase von spektral getrennten Impulskomponenten zu bestimmen [178].

Allerdings ist eine gemessene FROG-Trace stets mit Signalrauschen belegt, wodurch eine exakte Rekonstruktion des experimentellen elektrischen Feldes deutlich erschwert wird. Tatsächlich können durchaus unterschiedliche Laserpulse sehr ähnliche FROG-Traces haben [179]. Ist das durch die Messung bedingte Rauschen in der Größenordnung der Abweichungen zwischen zwei solcher FROG-Traces, so ist es sehr wahrscheinlich, dass vom Rekonstruktionsalgorithmus eine falsche Lösung gefunden wird. Diese kann jedoch meist durch Vergleich mit der gemessenen spektralen Intensität ausgeschlossen werden.

Neben SHG-FROG gibt es noch zahlreiche andere Varianten der frequenz aufgelösten Kreuz- und Autokorrelation. Viele von ihnen werden ausführlich im Buch von Rick Trebino erläutert [132]. Besonders prominent ist X-FROG, die statt einer Impulskopie einen kurzen und bereits charakterisierten Referenzimpuls verwendet [180, 181]. Die so erhaltene FROG-Trace legt die Richtung der Zeitachse korrekt fest. Außerdem zeigt sie große Ähnlichkeit mit der Husimi-Darstellung (vergleiche Abschnitt 3.2.2), so dass auch ohne eine Rekonstruktion wichtige Strukturen des Laserpulses sofort identifiziert werden können. Durch die Auswahl des Referenzimpulses und die Verwendung der Summen- oder Differenzfrequenzmischung ist diese Methode deutlich flexibler als SHG-FROG. So können auch Impulse vermessen werden, für die es keine SHG-Kristalle gibt. Da zudem das gemessene Signal nur linear von der Intensität des zu untersuchenden Impulses abhängt, kann die Empfindlichkeit der Messung durch Verwendung eines intensiveren Referenzimpulses deutlich erhöht werden.

4.2.3 Spektrale Interferometrie

Will man auf iterative Rekonstruktionsalgorithmen verzichten, die Laserpulse also in Echtzeit charakterisieren, so bietet sich die Technik der spektralen Interferometrie

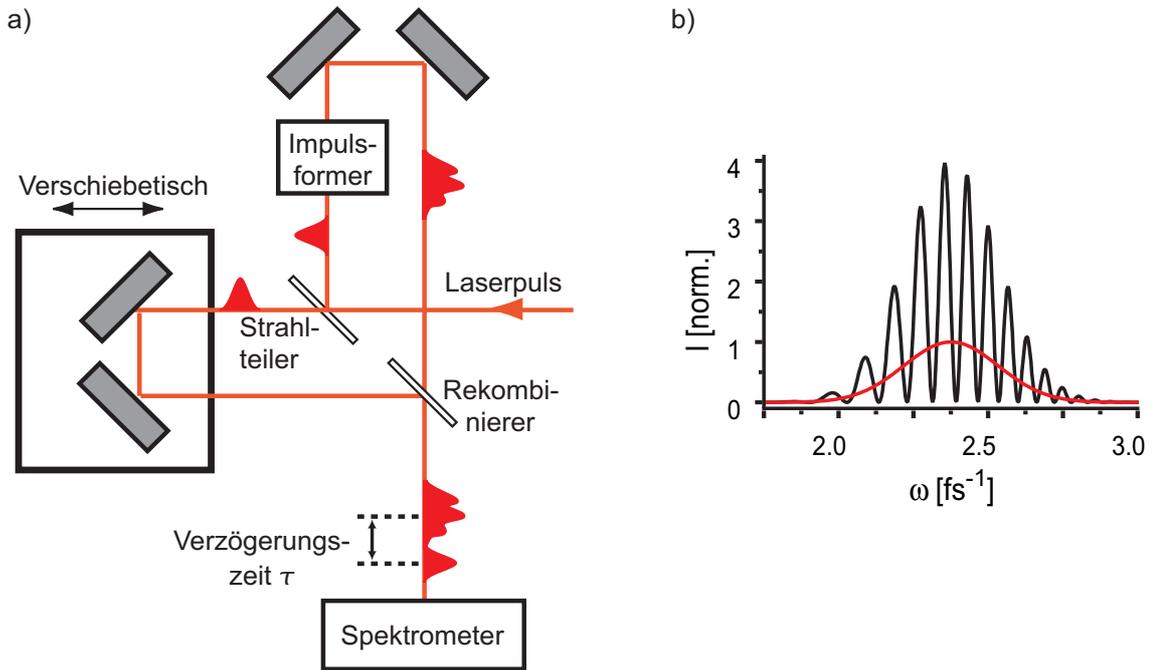


Abbildung 4.5: Spektrale Interferometrie (SI). (a) Schematische Darstellung des Aufbaus zur spektralen Interferometrie: Der geformte Impuls und der Referenzimpuls kommen mit einem wählbaren Laufzeitunterschied τ in dem OSA an und werden dort detektiert. (b) Das Signal des OSA für einen linear gechirpten Impuls.

(SI) [182–184] an. Zudem sind für diese Methode nur lineare optische Messungen nötig, so dass man mit dem selben Aufbau sowohl sehr kurze, als auch lange, komplex strukturierte Impulse vermessen kann. Ist das elektrische Feld der zu charakterisierenden Impulse linear polarisiert, so wird diese Technik TADPOLE (Temporal Analysis by Dispersing a Pair of Light Electric Fields) [185] genannt, wenn das elektrische Feld hingegen beliebig polarisiert ist, spricht man von POLLIWOG (Polarized Light Interference versus Wavelength of Only a Glint) [186].

Ein schematischer Versuchsaufbau ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Vor dem Impulsformer wird von dem eingehenden Impuls mittels eines Strahlteilers ein Referenzimpuls abgespalten, der einen Arm eines Interferometers variabler Weglänge durchläuft. Diese wird so gewählt, dass zwischen dem Referenzimpuls $E_0^+(t)$ und dem geformten Impuls $E^+(t)$ ein Laufzeitunterschied τ entsteht. An einem zweiten Strahlteiler rekombiniert man die beiden Impulse $E^+(t)$ und $E_0^+(t - \tau)$ und erhält am Spektrometer das Interferenzsignal $I_{SI}(\omega)$

$$I_{SI}(\omega) = 2\varepsilon_0 c_0 n |E_0^+(\omega) + E^+(\omega) \exp(-i\omega\tau)|^2. \quad (4.10)$$

Zusätzlich müssen die Spektren $I(\omega)$ und $I_0(\omega)$ des geformten und des ungeformten Impulses aufgenommen werden. In der Darstellung elektrischer Felder als Produkt von spektraler Phase $\Phi(\omega)$ und Amplitude $A(\omega)$ lassen sich diese Spektren einfach

als

$$I_0(\omega) = A_0(\omega)^2 \quad (4.11)$$

und

$$I(\omega) = A(\omega)^2 \quad (4.12)$$

schreiben.

Subtrahiert man diese beiden Signale von Gleichung (4.10)¹, so erhält man einen direkten Zusammenhang zwischen den Messgrößen und der spektralen Phase $\Phi(\omega)$

$$S(\omega) = I_{SI}(\omega) - I_0(\omega) - I(\omega) \quad (4.13)$$

$$= E_0^+(\omega)^* E^+(\omega) \exp(-i\omega\tau) + E_0^+(\omega) E^+(\omega)^* \exp(-i\omega\tau) \quad (4.14)$$

$$= 2\sqrt{I_0(\omega) I(\omega)} \cos[\Phi_0(\omega) - \Phi(\omega) - \omega\tau], \quad (4.15)$$

welche nun einfach durch Verwendung der inversen Kosinusfunktion bestimmt werden kann.

Allerdings ist diese Methode, insbesondere in Bereichen, in denen der Kosinus ungefähr eins ist, empfindlich auf Rauschen im Messsignal [184]. Es bietet sich deshalb an, das Signal $S(\omega)$ zunächst durch Fouriertransformation in den Zeitraum zu übertragen

$$S(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} S(\omega) \exp(i\omega t) d\omega. \quad (4.16)$$

Unter Verwendung der Definition von $S(\omega)$ erhält man so:

$$\begin{aligned} S(t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E_0^+(\omega)^* E^+(\omega) \exp[i\omega(t - \tau)] d\omega \\ &+ \left\{ \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E_0^+(\omega)^* E^+(\omega) \exp[i\omega(-t - \tau)] d\omega \right\}^* \\ &= \tilde{S}(t - \tau) + \tilde{S}^*(-t - \tau). \end{aligned} \quad (4.17)$$

Da $S(\omega)$ reell ist, gilt weiterhin $S(t) = S^*(-t)$. Somit genügt es, nur den positiven Verzögerungszeiten zwischen den beiden Impulsen entsprechenden Teil $S^+(t)$ von $S(t)$ zu betrachten. Weiterhin nimmt man an, dass die zeitliche Verzögerung τ zwischen Referenzimpuls und dem zu charakterisierenden Impuls größer ist als die einzelnen Impulsdauern². Dann gibt es nur Beiträge zu $S(t)$, die $t \approx \tau$ und $t \approx -\tau$ entsprechen, weshalb sich für $S^+(t)$ unter der Annahme, dass $\tau > 0$ ist, folgender einfacher Ausdruck ergibt:

$$S^+(t) = \tilde{S}(t - \tau). \quad (4.18)$$

¹Im Folgenden wird zur Vereinfachung der Notation $2\varepsilon_0 c_0 n = 1$ gesetzt.

²Dies kann durch Einstellen einer passenden Verzögerungszeit stets erreicht werden.

Durch inverse Fouriertransformation wird Gleichung (4.18) zu:

$$S^+(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{S}(t - \tau) \exp(-i\omega t) dt \quad (4.19)$$

$$= \sqrt{I_0(\omega) I(\omega)} \exp\{i[\Phi_0(\omega) - \Phi(\omega) - \omega\tau]\}. \quad (4.20)$$

Die spektrale Phase $\Phi(\omega)$ errechnet sich also einfach durch Bilden des Argumentes von $S^+(\omega)$. Dies ist möglich, da die spektrale Phase $\Phi_0(\omega)$ des Referenzimpulses im Voraus mittels einer FROG-Messung bestimmt wurde und man die Verzögerungszeit τ durch lineare Regression erhält.

Es konnte also gezeigt werden, dass es durch die Technik der spektralen Interferometrie in Kombination mit einer FROG-Messung des Referenzimpulses gelingt, einen unbekanntem Impuls in Echtzeit zu charakterisieren. Deshalb eignet sie sich insbesondere als Hilfsmittel zur Justage optischer Aufbauten, um beispielsweise instantan zu überprüfen, ob das Eingangsfeld durch sie verändert wird.

Kapitel 5

Methoden zur Formung von ultrakurzen Laserpulsen

Zu der in Kapitel 2 beschriebenen Kontrolle chemischer Systeme mittels ultrakurzer Lichtimpulse werden Laserpulse benötigt, die genau den zu kontrollierenden Prozess adressieren. Diese „maßgeschneiderten“ Lichtimpulse können durch Femtosekundenimpulsformung erzeugt werden. Optimalerweise möchte man gleichzeitig die Phase, Amplitude und den Polarisationszustand des Laserlichtes manipulieren, muss sich in der Praxis aber oft auf die Kontrolle einer oder zwei dieser Größen beschränken. Hierzu wurden zahlreiche unterschiedliche Ansätze verfolgt, die im nächsten Abschnitt 5.1 kurz vorgestellt werden sollen.

In Abschnitt 5.2 wird dann ausführlicher auf die, in unserer Arbeitsgruppe verwendete, Technik der Impulsformung mittels Flüssigkeitsdisplays (LCD) eingegangen. Neben der prinzipiellen Funktionsweise soll vor allem die Anwendung in der Polarisationsimpulsformung sowie in der gleichzeitigen Formung von Amplitude und Phase eines Laserpulses erläutert werden. Zudem werden Effekte die auf der Pixelierung der LCD-Phasenmaske beruhen ausführlich analysiert.

5.1 Techniken zur Impulsformung

Die direkte Manipulation der zeitlichen Struktur ultrakurzer Laserpulse ist aufgrund der hierzu nötigen extrem hohen Zeitauflösung nicht möglich. Wie in Abschnitt 3.1 erläutert, sind die Darstellung eines solchen Impulses im Zeit- und im Frequenzraum über die Fouriertransformation auf eindeutige Weise miteinander verknüpft, so dass die gewünschten Änderungen des Zeitverlaufes auch über eine Variation der spektralen Phase und Amplitude erreicht werden können. Dies geschieht mit Hilfe eines Nulldispersionskompressors, der das Herzstück eines jeden Impulsformers bildet. In diesem „4f-Aufbau“ wird das Laserlicht von einem Gitter, das sich im Brennpunkt einer Linse befindet, spektral aufgespalten (siehe Abbildung 5.1(a)) [45,187,188]. Die verschiedenen, im Spektrum des Impulses vorhandenen Farben werden von der Linse

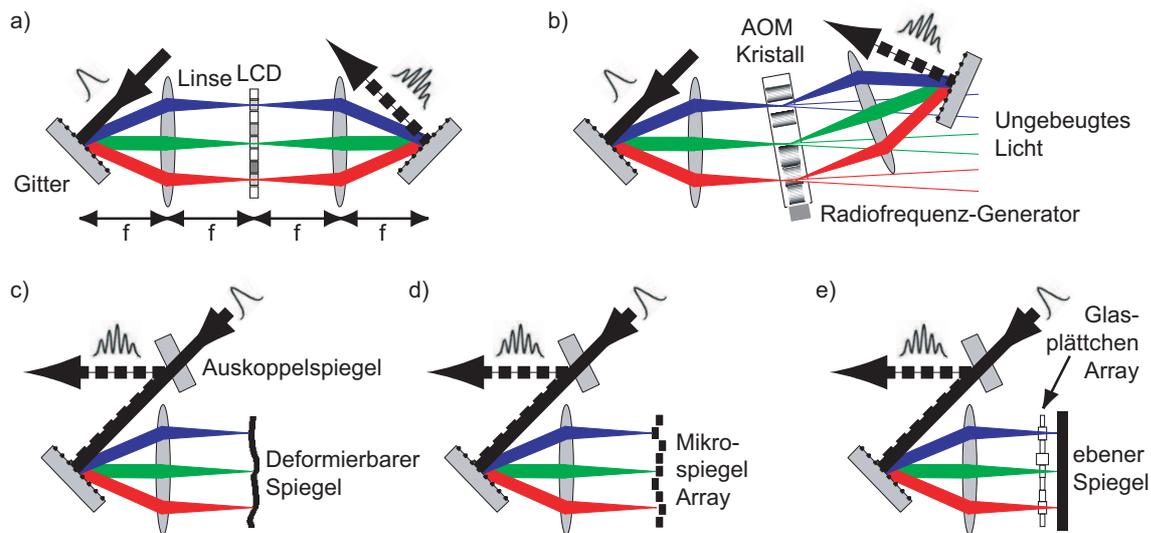


Abbildung 5.1: Impulsformer-Konzepte, die auf einem Nulldispersionskompressor ($4f$ -Aufbau) basieren: Der ankommende Laserpuls (schwarze Linien) wird von einem Gitter in seine spektralen Komponenten aufgespalten. Diese werden mit Hilfe einer Linse unabhängig voneinander in der Fourier-Ebene fokussiert, in der sich der eigentliche Modulator („spatial light modulator“ (SLM)) befindet, der je nach Typ die Manipulation von spektraler Phase, Polarisation und Amplitude ermöglicht. Hinter diesem werden die geformten spektralen Komponenten über einen symmetrischen Strahlenverlauf wieder zusammengeführt. Dieser kann über ein zweites Durchqueren des SLM (c)-(e) oder oder durch eine zweite Kombination aus Linse und Gitter (a)-(b) verwirklicht werden. Die verschiedenen SLMs sind: (a) LCD, (b) akustooptischer Modulator (AOM), (c) verformbarer Spiegel, (d) Mikrospiegel-Array und (e) Quarzplättchen-Array.

auf einzelne, in der Fourierebene nebeneinander liegende Punkte fokussiert. Durch einen in dieser Ebene platzierten „spatial light modulator“ (SLM) ist es möglich jede Spektralkomponente des Laserpulses einzeln zu manipulieren. Nach Durchlaufen des SLM wird das Licht durch einen zur ersten Hälfte symmetrischen Aufbau wieder rekombiniert, bei inaktivem SLM findet also keine Veränderung des Lichtimpulses statt. Alternativ zur Verwendung von jeweils zwei Linsen und Gittern kann der $4f$ -Aufbau auch reflektiv aufgebaut werden (siehe Abbildung 5.1(c)–(e)), so dass der einfallende und der ausfallende Strahl jeweils dieselben optischen Komponenten benutzen. Zudem werden statt herkömmlicher Linsen oft Hohlspiegel verwendet, da diese keine chromatische Aberration aufweisen. Weiterhin ist es möglich, Prismen als disperseive Elemente zu verwenden [189].

Die eigentliche Modulation des Laserpulses findet im SLM statt. Zu diesem Zwecke wurden zahlreiche Geräte entwickelt, die auf unterschiedliche Art arbeiten. Die üblichste Variante ist das in Abbildung 5.1(a) gezeigte Flüssigkristalldisplay (LCD). Über das Anlegen einer Wechselspannung kann hier der Brechungsindex des Materials gezielt verändert [187, 190, 191] und so eine für die verschiedenen Frequenzanteile unterschiedliche spektrale Phase eingeführt werden. Bei Verwendung von zwei LCDs

kann zusätzlich zur spektralen Phase auch noch die Amplitude oder aber der Polarisationszustand der einzelnen Komponenten variiert werden [60, 88, 89, 192]. Ein solcher Impulsformer wurde für diese Arbeit entwickelt und verwendet. Eine genauere Beschreibung erfolgt in den Abschnitten 5.2 und in Kapitel 6. Die Aufbauten zur LCD-Impulsformung wurden in den letzten Jahren stetig weiter entwickelt [193], so dass heute sogar Geräte zur Verfügung stehen, die eine gleichzeitige Modulation von Amplitude, Phase und Polarisation erlauben [194–196].

Auch akustooptische Modulatoren (AOM) können zur gleichzeitigen Modulation von Amplitude und Phase ultrakurzer Laserpulse eingesetzt werden [197, 198]. Der dazugehörige Impulsformer ist in Abbildung 5.1(b) zu sehen. Der SLM besteht in diesem Fall aus einem Kristall, in dem mittels eines Piezoelementes Schallwellen erzeugt werden. Diese verursachen entlang ihrer Ausbreitungsrichtung Dichtemodulationen, die einem variablen Brechungsindex entsprechen. So entsteht in dem Kristall ein Gitter, an dem die einfallenden Laserpulse gebeugt werden. Durch geschickte Variation der Intensität und Phase der Schallwellen kann die Intensität und die Phase des gebeugten Lichtes gesteuert werden. Gegenüber der Impulsformung mit LCDs hat die Verwendung von AOMs den Vorteil, dass sehr schnell zwischen unterschiedlichen Impulsformen geschaltet werden kann, während die Flüssigkristalle stets eine gewisse Zeit benötigen, bis sie sich in der beabsichtigten Orientierung befinden. Zudem erlauben AOMs eine direkte Impulsformung auch im ultravioletten Spektralbereich [199], wo LCDs eine starke Absorption aufweisen. Allerdings ist der Wirkungsgrad eines AOMs durch die maximal erreichbare Beugungseffizienz begrenzt, die bei etwa 30% liegt. Weiterhin ist es mit AOMs nicht möglich polarisationsgeformte Laserpulse zu erzeugen.

Die in Abbildung 5.1(c) und (d) gezeigten Impulsformer verwenden beide einstellbare Spiegel als SLM. Im ersten Fall handelt es sich um eine dünne Metallfolie, die durch rückseitig angebrachte Piezoelemente oder Kondensatoren gezielt verbogen werden kann [53, 57, 200, 201]. Dieses Verbiegen führt für die verschiedenen Frequenzen unterschiedliche optische Weglängen und somit unterschiedliche spektrale Phasen ein. Die pixelierte Variante besteht aus vielen kleinen Spiegeln, die durch Piezomotoren bewegt werden. Hierbei können die Spiegel je nach Konstruktion vor- und zurückgeschoben oder aber auch zusätzlich verkippt werden [202, 203]. So können alle Pixel unabhängig voneinander angesprochen werden, was für eine verlässliche Kalibrierung unabdingbar ist. Beide Impulsformer haben den Vorteil, dass sie für beliebige Wellenlängenbereiche eingesetzt werden können, sofern die Spiegel mit der passenden Beschichtung ausgestattet wurden.

Eine weitere, wenn auch eher selten eingesetzte Variante eines Impulsformers ist in Abbildung 5.1(e) dargestellt [204, 205]. Einzelne Quarzplättchen sind kurz vor einem Spiegel in der Fourierebene platziert und können getrennt voneinander verkippt werden. Je nach Verkipfung ändert sich die Weglänge, die das Licht im Glas zurücklegt, und somit auch die entsprechende Phasenverzögerung. Hierbei wird ein ungewollter Strahlversatz eingeführt, der allerdings aufgrund des reflektiven Aufbaus auf dem Rückweg wieder kompensiert wird. Dieser technisch doch recht anspruchsvolle Aufbau eignet sich ebenso wie die auf Spiegeln basierenden Impulsformer für einen brei-

ten Spektralbereich und ermöglicht zudem die Manipulation der spektralen Phase besonders intensiver Laserpulse [205].

5.2 LCD-Impulsformung

Aufgrund ihrer vielfältigen Einsatzmöglichkeiten sind Flüssigkristalldisplays die gängigsten, in Impulsformern eingesetzten Modulatoren. In diesem Abschnitt soll zunächst ihre Funktionsweise erklärt werden (Abschnitt 5.2.1). Anschließend (in Abschnitt 5.2.2) wird näher auf ihre Verwendung in Polarisationsimpulsformern und in Amplituden- und Phasenimpulsformern eingegangen, wobei auch die nun notwendige Notation zur Beschreibung der vektoriellen Eigenschaften von Licht bereit gestellt wird. Zum Abschluss werden dann in Abschnitt 5.2.4 einige Artefakte, die bei der Verwendung von LCDs zur Impulsformung auftreten, vorgestellt und mathematisch beschrieben.

5.2.1 Funktionsprinzip

In diesem Abschnitt soll die Funktionsweise von auf Flüssigkristalldisplays beruhenden SLMs [187, 190, 191] erläutert werden. Zu diesem Zweck ist ihr prinzipieller Aufbau in Abbildung 5.2(a) dargestellt.

Jedes Flüssigkristalldisplay besteht aus zwei parallelen Glasplatten, die auf ihren Innenseiten mit transparenten Elektroden aus Indiumzinnoxid (ITO) versehen sind. Die Elektroden haben eine Breite von etwa $100 \mu\text{m}$, eine Höhe von einigen Millimetern und sind eng nebeneinander auf dem Glassubstrat aufgebracht. Diese Zeile von Elektroden befindet sich in der Fourierebene des Nulldispersionskompressors, so dass jedes Elektrodenpaar von einer anderen Frequenz getroffen wird. Üblicherweise werden in diesen auch schon weiter oben beschriebenen Aufbauten Zylinderlinsen verwendet und zudem der Strahldurchmesser an die Höhe der ITO-Elektroden angepasst, so dass jede Elektrode von einem in y -Richtung ausgedehnten Fokus getroffen wird, und eine optimale Ausleuchtung des kompletten Displays gewährleistet ist. In dem Spalt zwischen den Glasplatten befindet sich die flüssigkristalline Verbindung, die eine nematische Phase ausbildet [206]. Durch eine spezielle Beschichtung der Glasoberfläche kann die Vorzugsrichtung dieser Phase festgelegt werden. In unserem Beispiel wurden die Substrate so beschichtet, dass sich die stäbchenförmigen Moleküle bei Abwesenheit von äußeren Störungen entlang der y -Richtung ausrichten (siehe Abbildung 5.2(b)). Durch Anlegen einer Wechselspannung (von 0-10 V) an die einzelnen Pixel¹ wird die Ausrichtung der Moleküle verändert. Wie in Abbildung 5.2(c) dargestellt, drehen sich diese nun in der yz -Ebene und versuchen sich entlang der z -Achse auszurichten, wobei der erzielte Grad an Ausrichtung von der Höhe der angelegten Spannung abhängt. Dadurch ändert sich das projizierte Dipolmoment in

¹Ein Pixel entspricht einem Elektrodenpaar.

y -Richtung, während dasjenige in x -Richtung unbeeinflusst bleibt. Infolgedessen ändert sich auch der Brechungsindex n_y für in y -Richtung polarisiertes Licht, während der Brechungsindex n_x für in x -Richtung polarisiertes Licht konstant bleibt. Somit hat man die Möglichkeit, durch Variation der anliegenden Spannung den Brechungsindex für jedes Pixel und somit auch für die entsprechenden Spektralkomponenten zu beeinflussen. Für in y -Richtung polarisiertes Licht mit der Frequenz ω , welches sich entlang der z -Achse ausbreitet und ein Display der Dicke d durchquert, ergibt sich ein spannungsabhängiger Phasenunterschied

$$\Delta\Phi(U, \omega) = \frac{\omega d}{c_0} [n_y(U, \omega) - n_y(0 \text{ V}, \omega)], \quad (5.1)$$

wobei die eingeführte Phase relativ zum ungestörten Zustand $U = 0 \text{ V}$ gemessen wird. Durch Aufnahme einer experimentellen Kalibrierungskurve $n_y(U, \omega)$ kann der nichtlineare Zusammenhang von Brechungsindex, Frequenz und angelegter Spannung auf einfache Weise berücksichtigt werden [191, 207].

Durch Wahl der passenden Spannung kann für jedes Pixel eine definierte Phasenverzögerung eingestellt, dem Laserpuls also beliebige spektrale Phase aufgeprägt werden. Allerdings muss hierzu dieser, eigentlich kontinuierliche, Phasenverlauf in eine den einzelnen Pixeln entsprechende Stufenfunktion umgewandelt werden. Die Auswirkungen dieser Näherung und die Effekte der Lücken zwischen den Pixeln werden

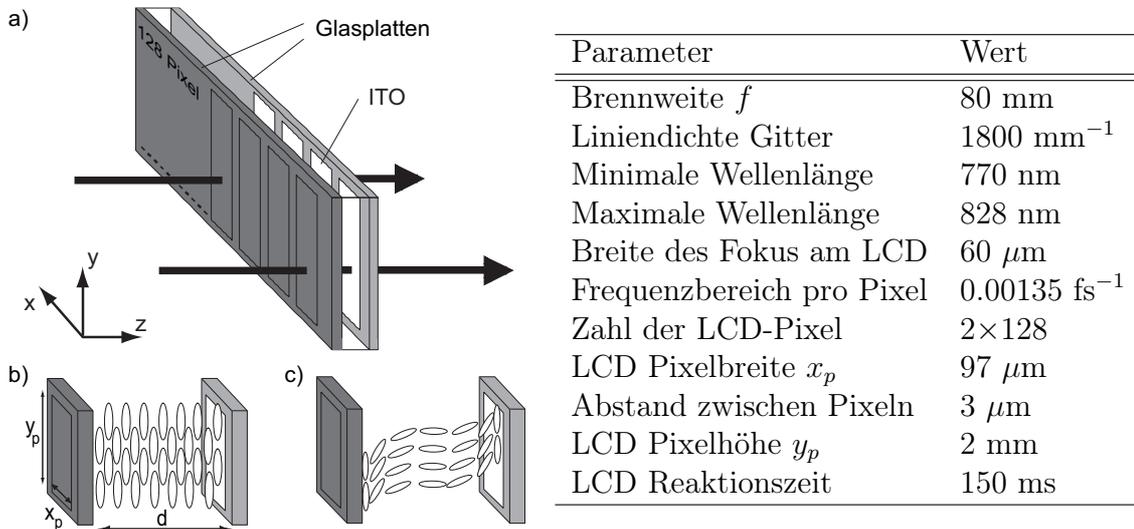


Abbildung 5.2: Flüssigkristalldisplay (LCD) als SLM in der Fourier-Ebene eines Impulsformers. (a) Aufbau des LCDs aus zwei mit ITO-Elektroden beschichteten parallelen Glasplatten. Die flüssigkristalline Substanz zwischen den Platten bildet eine nematische Phase, deren Vorzugsrichtung durch eine spezielle Beschichtung der Glasplatten bestimmt wird. (b) LCD ohne anliegende Spannung. Die Moleküle sind vollständig entlang der Vorzugsrichtung, hier die y -Achse, ausgerichtet. (c) LCD bei angelegter Wechselspannung. Die Moleküle versuchen nun sich entlang der z -Achse auszurichten, wodurch eine Änderung des Brechungsindex n_y des in y -Richtung polarisierten Lichtes bewirkt wird.

ausführlich in Abschnitt 5.2.4 diskutiert. Weiterhin können mit Flüssigkristalldisplays meist nur maximale Phasenverzögerungen von einigen π rad erreicht werden, was für die meisten Phasenfunktionen zu wenig ist. Hier macht man sich die Periodizität der Exponentialfunktion zu Nutze und schränkt den Formungsbereich auf $0 \text{ rad} \leq \Delta\Phi \leq 2\pi \text{ rad}$ ein. Phasenfunktionen, die diesen Bereich überschreiten, werden zu diesem Zweck, unter Wahrung der mathematischen Äquivalenz, modulo 2π dargestellt. Dies führt jedoch zu Phasensprüngen genannten Unstetigkeitsstellen, die Störungen in der Impulsformung verursachen. Diese werden ebenfalls in Abschnitt 5.2.4 betrachtet. Experimentelle Auswirkungen werden anschließend in Kapitel 8 gezeigt.

Der in dieser Arbeit verwendete Impulsformer besteht aus zwei LCD-Schichten mit jeweils 128 Pixeln. Seine charakteristischen Daten sind in der Tabelle neben Abbildung 5.2 zusammengefasst. Es wird ein Wellenlängenbereich von 770 nm bis 828 nm und somit das gesamte experimentelle Laserspektrum abgedeckt. Jedes einzelne Pixel hat eine spektrale Breite von $\omega_p = 1,35 \times 10^{-3} \text{fs}^{-1}$. Da die Phasendifferenz zwischen zwei benachbarten Pixeln maximal $\pm\pi$ rad betragen darf, beträgt das zeitliche Formungsfenster, in dem eine gezielte Formung des Laserpulses möglich ist, $2\pi/\omega_p = 4,66 \text{ ps}$. Außerhalb dieses Fensters treten Vor- und Nachimpulse auf, die in Abschnitt 5.2.4 genauer beschrieben werden. Ein weiterer wichtiger Parameter ist die Breite der Spalte zwischen den Pixeln. Sie beträgt 3% der Gesamtbreite, so dass man auch bei vollständiger Auslöschung eine Resttransmission von 3% erhält.

5.2.2 Steuerung des Polarisationszustandes ultrakurzer Laserpulse

Wie man im vorangehenden Abschnitt gesehen hat, ist die Wirkung eines Flüssigkristalldisplays sensitiv auf die Polarisation des einfallenden Lichtes. Aus diesem Grund soll sie fortan bei der Beschreibung der elektrischen Felder berücksichtigt werden. Da Licht sich als transversale Welle im Raum ausbreitet, genügen zwei zueinander orthogonale Komponenten um die vektoriellen Eigenschaften vollständig zu erfassen. In einem solchen Koordinatensystem ergibt sich dann für das zeitliche elektrische Feld:

$$\vec{E}(t) = \begin{pmatrix} A_1(t) \exp[i\Phi_1(t)] \\ A_2(t) \exp[i\Phi_2(t)] \end{pmatrix}, \quad (5.2)$$

und analog dazu für das Feld im Frequenzraum:

$$\vec{E}(\omega) = \begin{pmatrix} A_1(\omega) \exp[-i\Phi_1(\omega)] \\ A_2(\omega) \exp[-i\Phi_2(\omega)] \end{pmatrix}. \quad (5.3)$$

Sämtliche Aussagen aus Kapitel 3 gelten weiterhin und werden einfach auf die einzelnen Komponenten des elektrischen Feldes angewandt.

Die Wirkung optischer Komponenten auf den Polarisationszustand des Lichtes wird mit dem sogenannten Jones-Kalkül berechnet, welches in [208] ausführlich erklärt

wird. Jedem optischen Element wird dort eine komplexwertige, Jones-Matrix genannte 2×2 -Matrix zugeordnet. Die Wirkung eines optischen Bauteils auf einen beliebigen Polarisationszustand berechnet sich dann durch Multiplikation der entsprechenden Jones-Matrix mit dem Vektor des elektrischen Feldes:

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_{1,out}^+(\omega) \\ E_{2,out}^+(\omega) \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} J_{11}(\omega) & J_{12}(\omega) \\ J_{21}(\omega) & J_{22}(\omega) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{1,in}^+(\omega) \\ E_{2,in}^+(\omega) \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} J_{11}(\omega) E_{1,in}^+(\omega) + J_{12}(\omega) E_{2,in}^+(\omega) \\ J_{21}(\omega) E_{1,in}^+(\omega) + J_{22}(\omega) E_{2,in}^+(\omega) \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (5.4)$$

Wie man an Hand von Gleichung (5.4) erkennen kann, bilden die Diagonalelemente J_{11} und J_{22} einer Jones-Matrix die jeweilige Komponente des elektrischen Feldes wieder auf sich selbst ab, das heißt $E_{1,in}$ auf $E_{1,out}$ und entsprechend $E_{2,in}$ auf $E_{2,out}$. Die Nebendiagonalelemente J_{12} und J_{21} hingegen beschreiben die gegenseitige Kopplung der beiden Polarisationskomponenten. Ein idealer, zweilagiger LCD-Impulsformer, dessen aktive Achsen entlang der Richtungen 1 und 2 ausgerichtet sind, wird demnach durch folgende Jones-Matrix beschrieben:

$$J_{PS}(\omega) = \begin{pmatrix} \exp[-i\Delta\Phi_1(\omega)] & 0 \\ 0 & \exp[-i\Delta\Phi_2(\omega)] \end{pmatrix}. \quad (5.5)$$

Je nachdem, wie das einfallende Licht bezüglich den aktiven Achsen 1 und 2 des LCDs polarisiert ist, können nun verschiedene Arten der Impulsformung realisiert werden. Der einfachste Fall ist der, dass die Richtung der Polarisation mit einer der aktiven Achsen des Displays übereinstimmt. Hier handelt es sich um reine Phasenformung wie sie im vorangegangenen Abschnitt beschrieben wurde. Die zweite LCD-Schicht hat dabei keinerlei Einfluss auf das sie durchquerende Licht, da sie senkrecht zur Polarisation steht.

Ein Aufbau zur Polarisationsimpulsformung [209] ist in Abbildung 5.3 dargestellt: Das Licht fällt in x -Richtung, welche um 45° gegenüber der aktiven Achse 1 verkippt ist, linear polarisiert ein. Es kann in zwei gleich große, ebenfalls linear polarisierte Komponenten entlang der Richtungen 1 und 2 zerlegt werden. Jede der beiden Komponenten wird von der dazugehörigen LCD-Schicht um eine Phase $\Delta\Phi_1(\omega)$ beziehungsweise $\Delta\Phi_2(\omega)$ verzögert, so dass die resultierende Polarisation vom Wert der Nettphasendifferenz $\Delta\Phi(\omega) = \Delta\Phi_1(\omega) - \Delta\Phi_2(\omega)$ am Ausgang des Polarisationsimpulsformers bestimmt wird. Wie durch die schwarz gestrichelte Linie angedeutet, kann man die Ausrichtung des momentanen Feldvektors geometrisch aus den beiden Polarisationskomponenten konstruieren. Der zeitliche Verlauf des Feldvektors beschreibt stets eine Ellipse, deren Hauptachsen parallel zur x - und y -Achse sind. Diese Ellipsen müssen also immer tangential zu einem Quadrat sein, dessen Seiten parallel zu 1 und 2 verlaufen und dessen Diagonale durch die Amplitude des einfallenden Laserlichtes bestimmt wird. Für spezielle Phasendifferenzen erhält man zirkular oder aber auch in y -Richtung linear polarisiertes Licht (siehe rechter Teil von Abbildung 5.3). Insgesamt ist durch eine Variation der Phasendifferenz im Bereich von 0 rad bis 4π rad jeder die obigen Bedingungen erfüllende Polarisationszustand erreichbar.

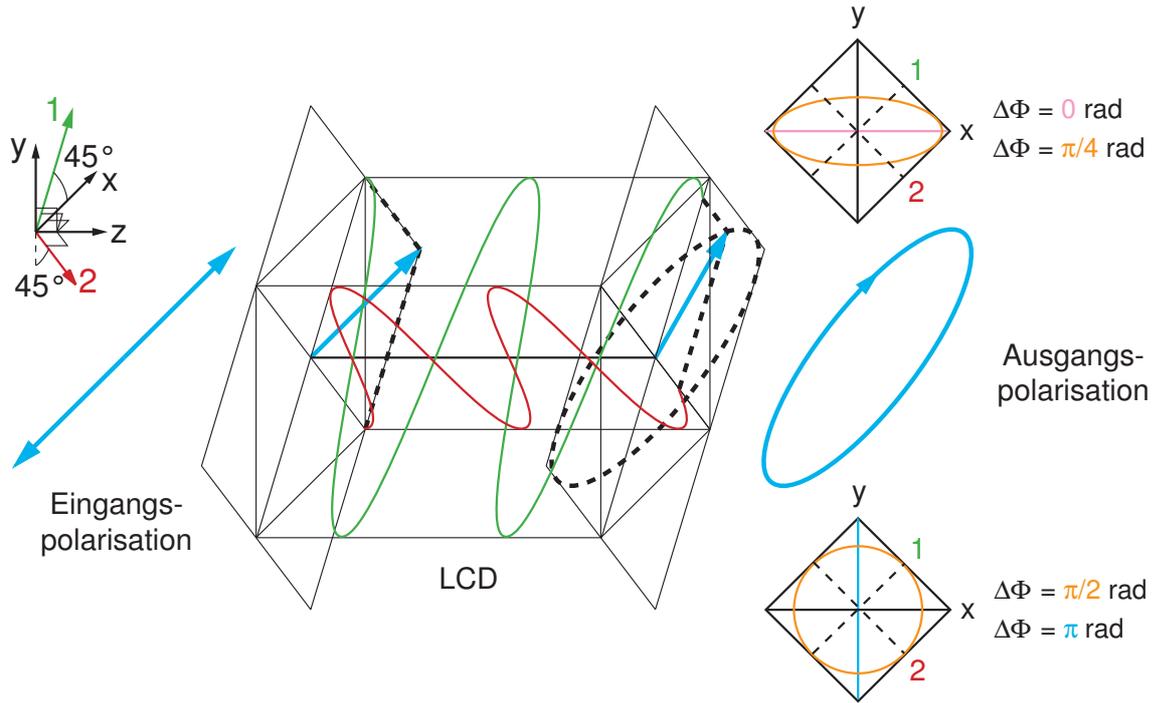


Abbildung 5.3: Funktionsweise eines Polarisationsimpulsformers. Das eingestrahlte, in x -Richtung polarisierte Licht kann in zwei gleich große Komponenten entlang der aktiven Achsen 1 und 2 (grün und rot) des zweischichtigen LCDs aufgespalten werden. Diese sind um $+45^\circ$ und -45° gegen die x -Richtung verkippt. Jede LCD-Schicht führt eine Phasenverzögerung ein, die sich jeweils nur auf die zu ihrer aktiven Achse parallelen Komponente auswirkt. Beim Verlassen des LCDs ergibt sich eine Nettphasendifferenz $\Delta\Phi$ zwischen den beiden Komponenten 1 und 2, die den resultierenden Polarisationszustand bestimmt. Einige Beispiele sind auf der rechten Seite der Abbildung dargestellt: $\Delta\Phi = 0$ rad: lineare Polarisation in x -Richtung; $\Delta\Phi = \pi/4$ rad: elliptische Polarisation; $\Delta\Phi = \pi/2$ rad: zirkuläre Polarisation; $\Delta\Phi = \pi$ rad: lineare Polarisation in y -Richtung;

Möchte man den Polarisationszustand nicht länger in Abhängigkeit der Komponenten E_1 und E_2 , sondern in Abhängigkeit der Komponenten E_x und E_y beschreiben, so muss eine Koordinatentransformation durchgeführt werden. Mit der Definition der Richtungen aus Abbildung 5.3 gilt:

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \end{pmatrix}. \quad (5.6)$$

Für in x -Richtung polarisiertes, einfallendes Licht der Frequenz ω und mit der Amplitude $E_{in}(\omega)$ ergibt sich also unter Beachtung von Gleichung (5.5):

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_{x,out}^+(\omega) \\ E_{y,out}^+(\omega) \end{pmatrix} &= \frac{E_{in}(\omega)}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \exp[-i\Delta\Phi_1(\omega)] & 0 \\ 0 & \exp[-i\Delta\Phi_2(\omega)] \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} \\ &= \frac{E_{in}(\omega)}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \exp[-i\Delta\Phi_1(\omega)] + \exp[-i\Delta\Phi_2(\omega)] \\ -\exp[-i\Delta\Phi_1(\omega)] + \exp[-i\Delta\Phi_2(\omega)] \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (5.7)$$

woraus man mittels einiger elementarer Umformungen folgenden Ausdruck für die Komponenten in x - und y -Richtung gewinnen kann:

$$E_{x,out} = b(\omega) \cos \left[\frac{\Delta\Phi_1(\omega) - \Delta\Phi_2(\omega)}{2} \right] \quad (5.8)$$

$$E_{y,out} = -ib(\omega) \sin \left[\frac{\Delta\Phi_1(\omega) - \Delta\Phi_2(\omega)}{2} \right]. \quad (5.9)$$

Wobei

$$b(\omega) = E_{in} \exp \left\{ \frac{-i[\Delta\Phi_1(\omega) + \Delta\Phi_2(\omega)]}{2} \right\} \quad (5.10)$$

ein beiden Komponenten gemeinsamer Vorfaktor ist. Der in ihm enthaltene Mittelwert der beiden Phasen $\Delta\Phi_1(\omega)$ und $\Delta\Phi_2(\omega)$ bestimmt die relative Phase bezüglich den anderen Spektralkomponenten, während die Phasendifferenz zwischen den beiden Komponenten den Polarisationszustand festlegt. Somit lässt sich mit diesem Aufbau sowohl der Polarisationszustand als auch die spektrale Phase eines Laserpulses manipulieren.

Allerdings beschreibt die in Gleichung (5.5) gegebene Jones-Matrix lediglich einen idealisierten Polarisationsimpulsformer. Da aber in der Realität jedes optische Bauteil einen Einfluss auf den Polarisationszustand des Lichtes hat, müssen die Komponenten vor und nach dem LCD mit berücksichtigt werden:

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_{1,out}^+(\omega) \\ E_{2,out}^+(\omega) \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} J_{11}^{(2)}(\omega) & J_{12}^{(2)}(\omega) \\ J_{21}^{(2)}(\omega) & J_{22}^{(2)}(\omega) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \exp[-i\Delta\Phi_1(\omega)] & 0 \\ 0 & \exp[-i\Delta\Phi_2(\omega)] \end{pmatrix} \\ &\times \begin{pmatrix} J_{11}^{(1)}(\omega) & J_{12}^{(1)}(\omega) \\ J_{21}^{(1)}(\omega) & J_{22}^{(1)}(\omega) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{1,in}^+(\omega) \\ E_{2,in}^+(\omega) \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (5.11)$$

Dies geschieht durch die Jones-Matrizen $J^{(1)}(\omega)$ und $J^{(2)}(\omega)$, wobei erstere die Komponenten vor und letztere die Komponenten nach dem LCD beschreibt. Jede dieser Jones-Matrizen kann durch sukzessive Multiplikation der Einzelmatrizen gewonnen werden, wobei hierfür der genaue Strahlenverlauf im optischen Aufbau bekannt sein muss.

Wie in [210] gezeigt, kann man (5.11) in

$$\begin{pmatrix} E_{1,out}^+(\omega) \\ E_{2,out}^+(\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_{11}(\omega) & a_{12}(\omega) \\ a_{21}(\omega) & a_{22}(\omega) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \exp[-i\Delta\Phi_1(\omega)] \\ \exp[-i\Delta\Phi_2(\omega)] \end{pmatrix} \quad (5.12)$$

umschreiben und somit einen einfachen Zusammenhang zwischen den an den zwei Schichten des LCDs eingeführten Phasenverzögerungen und der resultierenden Impulsform herstellen. In Gleichung (5.12) sind, für eine gegebene Eingangsimpulsform, diejenigen Informationen, die von den am SLM angelegten Spannungen unabhängig sind, in der komplexwertigen Matrix $\hat{a}(\omega)$ zusammengefasst. Diese kann experimentell dadurch bestimmt werden, dass man für verschiedene, bekannte Phasenverzögerungen die resultierende Impulsform mittels spektraler Interferometrie (vergleiche

Abschnitt 4.2.3) charakterisiert und anschließend die Koeffizienten von \hat{a} durch lineare Regression ermittelt. Obwohl es sich um keine Jones-Matrix im strengen Sinne handelt, wird $\hat{a}(\omega)$ als experimentelle Jones-Matrix bezeichnet.

Für einen „idealen“ Polarisationsimpulsformer nimmt $\hat{a}(\omega)$ die Form

$$\hat{a}(\omega) = a(\omega) \begin{pmatrix} \exp[-i\phi(\omega)] & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (5.13)$$

an, wobei $a(\omega) \in \mathbb{R}$ die Veränderung der Amplitude durch den Impulsformer und $\phi(\omega) \in \mathbb{R}$ die zwischen den beiden Polarisationskomponenten eingeführte relative Phase beschreibt.

Durch Vergleich der experimentellen Jones-Matrix mit der aus Gleichung (5.13) kann die „Qualität“ des benutzten Impulsformers abgeschätzt werden, so dass man ein Maß dafür gewinnt inwiefern die verwendeten optischen Bauteile, wie Gitter und Spiegel, eine zusätzliche Phasen- und Polarisationsmodulation bewirken². Weiterhin erlaubt es die experimentelle Jones-Matrix, an Hand der angelegten Phasen die resultierende Impulsform vorherzusagen.

5.2.3 Amplituden- und Phasenformung

Der oben beschriebene Polarisations- und Phasenimpulsformer kann durch Platzieren eines Polarisationsfilters hinter dem SLM in einen Amplituden- und Phasenimpulsformer umgewandelt werden. Ist der Filter beispielsweise nur für in x -Richtung polarisiertes Licht durchlässig, so erhält man nach dem Impulsformer:

$$E_{out}(\omega) = b(\omega) \cos \left[\frac{\Delta\Phi_1(\omega) - \Delta\Phi_2(\omega)}{2} \right]. \quad (5.14)$$

Auch hier wird die spektrale Phase vom Mittelwert der beiden Phasenverzögerungen bestimmt, die Amplitude hingegen von ihrer Differenz. Somit können spektrale Amplitude und Phase gleichzeitig und unabhängig voneinander eingestellt werden.

5.2.4 Simulation LCD-geformter Laserpulse

In den vorangegangenen Abschnitten wurde erklärt, wie Impulsformung mit LCDs funktioniert. Obwohl diese sehr vielfältige Manipulationen des eingehenden Laserpulses erlauben, muss man bei ihrer Verwendung einige Einschränkungen beachten, die verschiedene Ursachen haben. Dabei gibt es Einschränkungen prinzipieller Natur, die Folge der Pixelierung des LCDs oder der begrenzten Fokussierbarkeit des Laserstrahles sind. Diese lassen sich nicht vermeiden, aber genau vorhersagen. Andere Einschränkungen sind konstruktionsbedingt, wie zum Beispiel Störungen durch die Spalte zwischen den LCD-Pixeln, deren nicht unbegrenzt scharfe Ränder oder auch der nur begrenzt einstellbare Phasenbereich. Diese Einflüsse variieren von LCD

²Dieser Aspekt wird in Abschnitt 6 eingehender behandelt werden.

zu LCD und können zumindestens im Prinzip durch eine verbesserte Fertigung reduziert werden. All diese Abweichungen von einem idealen Impulsformer verursachen Störungen der Impulsform [211, 212], die im Folgenden beschrieben werden sollen. Dazu wird von Amplituden- und Phasenformung einer Komponente, zum Beispiel der x -Komponente des elektrischen Feldes, ausgegangen, weshalb das elektrische Feld nun wieder als Skalar geschrieben wird.

Die Wirkung des Impulsformers besteht darin, jede einzelne spektrale Komponente in Amplitude und Phase zu verändern und kann als Einwirkung eines linearen optischen Elementes auf das eingestrahlte elektrische Feld beschrieben werden:

$$E_{\text{out}}^+(\omega) = M_{\text{LCD}}(\omega) E_{\text{in}}^+(\omega). \quad (5.15)$$

Dabei ist $M_{\text{LCD}}(\omega)$ eine komplexe Transferfunktion, die als Faltung der LCD-Maskenfunktion $M(x)$ mit dem Strahlprofil einer einzelnen spektralen Komponente $S(x)$ definiert ist. Diese drei Funktionen werden zunächst in Abhängigkeit der x -Achse beschrieben, da diese parallel zur Frequenzachse verläuft (vgl. Graphik 5.2) und die Ausmaße des LCD sowie Strahlprofil als Funktion von x bekannt sind:

$$\begin{aligned} M_{\text{LCD}}(x) &= [S(x) * M(x)](x) \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} S(x - x') M(x') dx'. \end{aligned} \quad (5.16)$$

Da der Strahldurchmesser so angepasst ist, dass der Strahl in y -Richtung komplett innerhalb der Pixelhöhe liegt, muss auch beim Strahlprofil nur die x -Abhängigkeit berücksichtigt werden.

Nimmt man ein perfektes LCD an, das keine Zwischenräume zwischen den Pixeln aufweist, die zudem scharf begrenzt sind, so ist die Maskenfunktion eine Summe von Rechteckfunktionen, in der jede Rechteckfunktion einem Pixel entspricht [211, 212]:

$$M(x') = \sum_{n=1}^N \text{rect}\left(\frac{x' - x_n}{\Delta x}\right) T_n e^{-i\Phi_n}. \quad (5.17)$$

Dabei ist x_n die Mitte des n -ten Pixels und T_n und Φ_n sind die zugehörige relative Amplitude und Phase, die geformt werden sollen. Im Fall von reiner Phasenformung ist $T_n = 1$. Δx gibt die Breite eines Pixel an, womit die Rechteckfunktion wie folgt definiert wird:

$$\text{rect}(x) = \begin{cases} 1 & \text{für } |x| \leq 1/2, \\ 0 & \text{für } |x| > 1/2. \end{cases} \quad (5.18)$$

Diese Maskenfunktion soll in Abhängigkeit der Frequenz geschrieben werden. Dazu benötigt man einen Ausdruck für die Ortsabhängigkeit der Frequenz $\omega(x)$. Diese ist nur annähernd linear und wird in der Praxis experimentell gemessen. Für schmale Spektren kann jedoch mit guter Näherung einen linearen Verlauf annehmen. Werden Gitter zur Aufspaltung verwendet und sind ω_{min} und ω_{max} die Frequenzen an den Rändern des LCDs so ist:

$$\omega(x) = \frac{1}{X} (x - x_{\text{min}}) (\omega_{\text{max}} - \omega_{\text{min}}) + \omega_{\text{min}}, \quad (5.19)$$

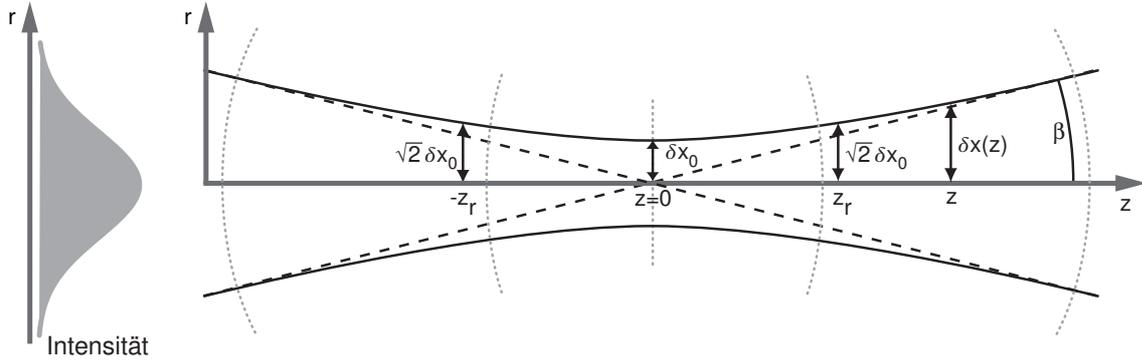


Abbildung 5.4: Profil eines gaußförmigen Laserstrahls: Der Graph links zeigt den Intensitätsverlauf als Funktion des Abstandes r von der z -Achse. Rechts ist die Ausdehnung eines solchen Strahls beim Durchlaufen eines Fokus bei $z = 0$ dargestellt. Die hyperbolische Linie markiert den Abstand von der Strahlmitte, bei dem die Intensität auf $1/e$ relativ zu dieser abgefallen ist. Im Fokus beträgt der minimale Radius δx_0 , während er im Abstand $z = \pm z_r$, der Rayleigh-Länge, auf $\sqrt{2}\delta x_0$ angewachsen ist. Für große Abstände vom Fokus nimmt der Strahlradius linear mit z zu, wobei der Winkel β als Divergenz bezeichnet wird.

wobei X die Breite der LCD-Zeile ist. Wenn man dies in die allgemeine Form der frequenzabhängigen Maskenfunktion

$$M(\omega') = \sum_{n=1}^N \text{rect}\left(\frac{\omega' - \omega_n}{\Delta\omega_n}\right) T_n e^{-i\Phi_n} \quad (5.20)$$

einsetzt, so hängt die Breite der Pixel im Frequenzraum $\Delta\omega_n$ nicht mehr von der Pixelnummer n ab und wird einfach als $\Delta\omega$ geschrieben. Das Strahlprofil einer spektralen Komponente ω kann für einen Laser, der in der TEM_{00} Mode arbeitet, als Gaußfunktion angenommen werden (siehe Abbildung 5.4) [213]. Der Querschnitt entlang der x -Achse ist damit:

$$S(x') = \frac{1}{\delta x \sqrt{\pi}} \exp\left[-\frac{(x' - x)^2}{\delta x^2}\right]. \quad (5.21)$$

Hierbei ist x die der Frequenz ω entsprechenden Position auf dem Flüssigkristalldisplay. Durch den Vorfaktor des Exponentialterms wird das Strahlprofil normiert. δx ist der Radius des Strahls in x -Richtung, bei dem die Intensität relativ zur Intensität in der Strahlmitte auf $1/e$ abgefallen ist. In der Nähe eines Fokus erhält man für ihn

$$\delta x(z) = \delta x_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_r^2}}, \quad (5.22)$$

wobei $z_r = \pi\delta x_0^2/\lambda$ die sogenannte Rayleigh-Länge ist. Sie ist derjenige Abstand vom Fokus, an dem der Strahldurchmesser auf $\sqrt{2}\delta x_0$ relativ zum kleinsten Durchmesser

(Strahltaile) δx_0 angewachsen ist. Für große Abstände z vom Fokus kann $\delta x(z)$ durch einen linearen Verlauf angenähert werden:

$$\delta x(z) \approx \delta x_0 \frac{z}{z_r} = \frac{z\lambda}{\pi \delta x_0}. \quad (5.23)$$

Sind die Parameter des Impulsformers bekannt, so kann aus ihnen mittels Gleichung (5.23) auch δx_0 bestimmt werden. Da das LCD genau im Abstand einer Brennweite vom Fokussierspiegel entfernt steht, ist $z = F$. Der Strahlradius $\delta x(F)$ entspricht dem Strahlradius R vor dem Gitter und die Wellenlänge wird einfach aus der betrachteten Frequenzkomponente berechnet $\lambda = 2\pi c/\omega$. Dann erhält man für den minimalen Strahldurchmesser im $4f$ -Aufbau:

$$\delta x_0 = \frac{F\lambda}{\pi R} = \frac{2cF}{R\omega}. \quad (5.24)$$

Die Größe der Foki ist somit abhängig von der Frequenz des fokussierten Lichtes. Da jedoch schon weiter oben die Breite des Spektrums als klein angenommen wurde, kann auch dieser Effekt im Folgenden vernachlässigt werden.

Für die weitere Verwendung kann auch das Strahlprofil mit einem umgerechneten Strahlradius $\delta\omega = \delta x \Omega/X$ in Abhängigkeit der Frequenz in der Fourierebene ausgedrückt werden:

$$S(\omega') = \frac{1}{\delta\omega\sqrt{\pi}} \exp\left[\frac{-(\omega - \omega')^2}{\delta\omega^2}\right]. \quad (5.25)$$

Setzt man die LCD-Maskenfunktion $M(\omega)$ und das Strahlprofil $S(\omega)$ in Gleichung (5.16) ein, wird die Faltung zu

$$\begin{aligned} M_{\text{LCD}}(\omega) &= \left[\frac{1}{\delta\omega\sqrt{\pi}} \exp\left(\frac{-\omega^2}{\delta\omega^2}\right) * \sum_{n=1}^N \text{rect}\left(\frac{\omega - \omega_n}{\Delta\omega}\right) T_n e^{-i\Phi_n} \right](\omega) \quad (5.26) \\ &= \frac{1}{\delta\omega\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left[\frac{-(\omega - \omega')^2}{\delta\omega^2}\right] \sum_{n=1}^N \text{rect}\left(\frac{\omega' - \omega_n}{\Delta\omega}\right) T_n e^{-i\Phi_n} d\omega'. \end{aligned}$$

Mit dieser Gleichung kann ausgehend von einem Eingangsfeld $E_{in}^+(\omega)$ das resultierende Feld $E_{out}^+(\omega)$ simuliert werden. Sie wurde für alle Simulationen in Kapitel 8 verwendet und zeigt die Auswirkungen der Pixelierung von eigentlich kontinuierlichen Phasenfunktionen sehr deutlich. Allerdings berücksichtigt die obige Transferfunktion $M_{\text{LCD}}(\omega)$ keine Pixelzwischenräume und geht weiterhin von scharf begrenzten Pixeln, also einer perfekten Stufenfunktion, aus. Als Frequenzachse wurde bei den Simulationen die Achse der experimentell ermittelten Frequenzachse verwendet, so dass die (wenn auch sehr schwache) nichtlineare Dispersion berücksichtigt wurde.

Möchte man die Folgen der Pixelierung nicht nur in numerischen Simulationen, sondern auch analytisch studieren, ist es nützlich das Laserspektrum durch eine Stufenfunktion anzunähern [211]. Um die Interpretation nicht unnötig zu erschweren,

wird ein bandbreitebegrenzter Laserpuls mit symmetrischem Spektrum angenommen. Wie aus Kapitel 3 bekannt, ist die Phasenfunktion eines solchen Pulses konstant Null. Dieses Spektrum wird als Summe von Rechteckfunktionen angenähert, deren Breite jener der LCD-Pixel entspricht:

$$E_{\text{in}}^+(\omega) = \sum_{n=1}^N \text{rect}\left(\frac{\omega - \omega_n}{\Delta\omega}\right) A_n. \quad (5.27)$$

A_n ist also die spektrale Amplitude des eingehenden Impulses in der jeweiligen Pixelmitte. Das Einsetzen des Spektrums und der Transferfunktion (5.26) in Gleichung (5.15) ergibt:

$$E_{\text{out}}^+(\omega) = \left[\frac{1}{\delta\omega\sqrt{\pi}} \exp\left(\frac{-\omega^2}{\delta\omega^2}\right) * \sum_{n=1}^N \text{rect}\left(\frac{\omega - \omega_n}{\Delta\omega}\right) A_n T_n e^{-i\Phi_n} \right] (\omega). \quad (5.28)$$

Da die Rechteckfunktion der LCD-Maske und die des Spektrums genau übereinanderliegen, kann A_n direkt in die Summe über n geschrieben werden. Den zeitlichen Verlauf des geformten Laserpulses $E_{\text{out}}^+(t)$ erhält man über die inverse Fouriertransformation von Gleichung (5.28). Durch Anwendung des Faltungstheoremes erhält man im Fall des elektrischen Feldes:

$$E_{\text{out}}^+(t) = \frac{\Delta\omega}{2\pi} \exp\left(-\frac{1}{4}\delta\omega^2 t^2\right) \text{sinc}\left(\frac{1}{2}\Delta\omega t\right) \sum_{n=1}^N A_n T_n \exp[i(\pi - \omega_n t - \Phi_n)]. \quad (5.29)$$

Das geformte elektrische Feld ist also das Produkt dreier Faktoren: Eines Exponentialtermes, eines sinc-Termes und einer Summation. Letztere beschreibt zusammen mit dem sinc-Term das zeitliche elektrische Feld für den Fall, dass die spektrale Auflösung $\delta\omega$ des Nulldispersionskompressors unendlich fein ist. Die Summation ist eine komplexe Fourierreihe, die bei einem diskreten Signal und überall gleichem Abstand $\Delta\omega$ zwischen zwei Datenpunkten eine periodische Funktion mit Periode $T = 2\pi/\Delta\omega$ ergibt. T entspricht dabei genau dem Zeitbereich, der über die spektrale Phase eindeutig erfasst werden kann (vgl. Abschnitt 5.2). Das bedeutet, dass außerhalb dieses Bereichs Vor- und Nachimpulse auftreten, die eine exakte Kopie des gewünschten Impulses sind. Sie sind eine direkte Konsequenz der Pixelierung des LCD. Pulsformer, wie akustooptische Modulatoren, die eine kontinuierliche Modulation der Phase erlauben, produzieren diese Impulsreplika nicht.

Die Intensität der Impulsreplika wird von der sinc-Funktion begrenzt. Ihre Breite hängt von dem Abstand der Datenpunkte im Frequenzraum, also der Pixelgröße $\Delta\omega$ am LCD, ab. So bedingen schmale Pixel eine breite sinc-Funktion und damit einen großen Zeitbereich, in dem Impulsformung möglich ist. Breite Pixel hingegen schränken den Zeitbereich, in dem Impulse signifikanter Energie geformt werden können, stark ein. Abbildung 5.5 zeigt dieses Zeitfenster anhand einer Simulation, die auf den Spezifikationen des für diese Arbeit verwendeten Pulsformers beruht (Pixelbreite $\Delta\omega = 1.35 \times 10^{-3} \text{ fs}^{-1}$, Strahlradius $\delta x = 30 \mu\text{m}$ bzw. $\delta\omega = 0.405 \times 10^{-3} \text{ fs}^{-1}$). In Abbildung 5.5(a) ist zunächst die angestrebte Impulsform gezeigt. Ein Laserpuls

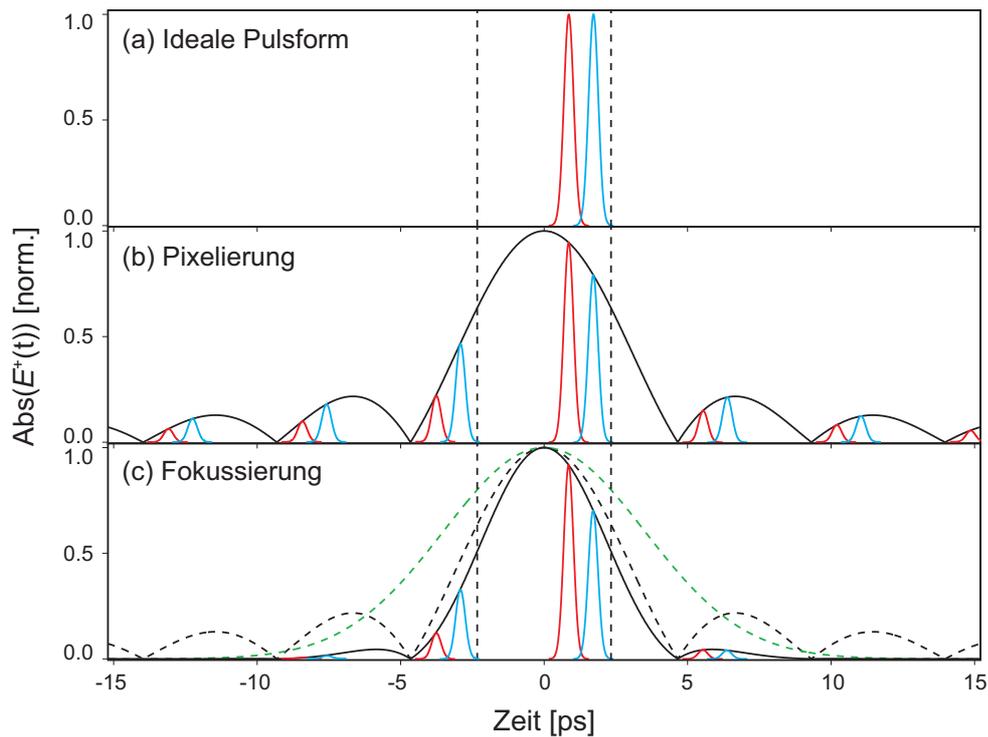


Abbildung 5.5: Zeitfenster eines pixelierten Impulsformers. (a) Ideale Impulsform. Ein gaußförmiger Laserpuls mit einer Amplitudenhalbwertsbreite von 400 fs wird mit einer linearen spektralen Phase um 860 fs (rote Linie) bzw. 1720 fs (blaue Linie) verschoben. (b) Simuliertes Ergebnis der Impulsformung bei Berücksichtigung der Pixelierung der Phasenmaske (Pixelbreite $\Delta\omega = 1.35 \times 10^{-3} \text{ fs}^{-1}$). Die Amplitude der periodisch wiederkehrenden Vor- und Nachimpulse wird durch die sinc-Funktion (schwarze Linie) beschränkt. (c) Bei zusätzlicher Berücksichtigung des endlichen Strahlradius (hier $\delta x = 30 \mu\text{m}$ bzw. $\delta\omega = 0.405 \times 10^{-3} \text{ fs}^{-1}$) kommt eine zusätzlich einschränkende Gaußfunktion (grüne, gestrichelte Linie) zum sinc-Term (schwarze, gestrichelte Linie) hinzu. Das Produkt beider Funktionen ergibt das Zeitfenster (schwarze Linie), dessen Halbwertsbreite mit senkrechten gestrichelten Linien eingezeichnet ist. Da in diesem Fall der Strahldurchmesser kleiner als die Pixelbreite ist, unterdrückt der Gaußterm hauptsächlich die Vor- und Nachimpulse bei betragsmäßig großen zeitlichen Verschiebungen.

mit der auf die Amplitude bezogene Halbwertsbreite von 400 fs wird bei maximaler Transmission über eine lineare spektrale Phase einmal um 860 fs (rote Linie) und einmal um 1720 fs (blaue Linie) verschoben. In 5.5(b) ist das Ergebnis dargestellt, das nur durch Berücksichtigung der Pixelierung der Phasenmaske erhalten wird. Der Betrag der sinc-Funktion (schwarze Linie) schränkt die Amplitude der Impulsreplika für große zeitliche Verschiebungen ein. Diese treten mit der Periodizität von 4.66 ps auf, was genau der Breite des über die Steigung der spektralen Phase eindeutig darstellbaren Formungsbereichs des Impulsformers entspricht. Die Grenzen dieses bei Experimenten maximal nutzbaren Zeitbereiches sind mit zwei senkrechten, gestrichelten Linien angegeben. An seinem Rand ist die maximal mögliche Amplitude

des elektrischen Feldes auf 64 % der Amplitude eines ungeformten Pulses zur Zeit $t = 0$ fs abgefallen.

Zusätzlich wird das zeitliche Formungsfenster durch die begrenzte spektrale Auflösung beschränkt. Diese bedingt den Gaußterm in Gleichung (5.29) (grüne, gestrichelte Linie in Abbildung 5.5). Mit zunehmender spektraler Auflösung, das heißt mit abnehmendem Strahlradius $\delta\omega$, nimmt die Breite der Gaußfunktion zu, die Einschnürung des Zeitfensters also ab. Da das tatsächliche Zeitfenster, in dem Impulse auftreten können, durch das Produkt aus Gaußterm und sinc-Funktion bestimmt ist, wird hier unmittelbar klar, dass sich der formbare Zeitbereich durch ein LCD mit schmalen Pixeln nicht beliebig erweitern lässt. Vielmehr muss dazu gleichzeitig die spektrale Auflösung des Aufbaus erhöht werden.

Der hier verwendete Impulsformer hat eine Pixelbreite von $97 \mu\text{m}$ und einen minimalen Strahlradius von circa $30 \mu\text{m}$, weshalb das Zeitfenster im wesentlichen von der Pixelierung des LCDs bestimmt ist, was in Abbildung 5.5(c) deutlich sichtbar ist. Die gestrichelten Linien entsprechen dem Gaußterm (grün) und der schon in Abbildung 5.5(b) gezeigten sinc-Funktion (schwarz). Sie sind als Vergleich zum Produkt beider Funktionen (schwarze, durchgezogene Linie), das das Zeitfenster angibt, eingezeichnet. Für betragsmäßig große Zeiten unterdrückt der begrenzte Strahlradius über die Gaußfunktion die Replika-Impulse, während der Einfluss auf den relevanten Formungsbereich zwischen den senkrechten, gestrichelten Linien klein bleibt.

Mit Gleichung (5.29) können die grundlegenden Vorgänge in einem LCD-Impulsformer anschaulich beschrieben werden. Aufgrund verschiedener noch nicht berücksichtigter Effekte stellt man im Experiment jedoch Abweichungen von diesem idealisierten Verhalten fest.

Zunächst ist der Einfluss der Näherungen bei der Herleitung von Gleichung (5.29) zu erwähnen. Sie liefert auch bei konstanter Amplitude und Phase für alle Pixel oder sogar bei ausgeschaltetem LCD Vor- und Nachimpulse. Sie treten in diesen Fällen zwar zu den Zeiten $\pm nT$ mit $n = 1, 2, \dots$ auf, jedoch ist die sinc-Funktion nur an genau einer Stelle Null, weshalb die Vor- und Nachimpulse nicht vollständig entfernt werden. Sie rühren von der Annäherung des Spektrums durch eine Summe von Rechteckfunktionen her, die die einfache Fouriertransformation von Gleichung (5.28) ermöglicht. Diese Näherung hat die gleiche Konsequenz wie eine durch das LCD eingeführte gestufte Modulation von Amplitude und Phase.

Möchte man den Einfluss der nichtlinearen Dispersion der Gitter verstehen, so empfiehlt sich eine alternative Betrachtung der Vor- und Nachimpulse. Diese können auch als Konsequenz der mit 2π periodischen Phase interpretiert werden. Betrachtet man zwei LCD-Pixel, die zwei festgelegte Phasenverzögerungen einführen, ist die relative Phase zwischen beiden nicht eindeutig bestimmbar. Mathematisch macht es keinen Unterschied, ob zu der direkten Differenz beliebige, ganzzahlige Vielfache von 2π addiert werden. Wie in Abschnitt 5.2.1 erklärt, macht man sich das zu Nutze, wenn eine Phasenfunktion, die den Phasenformungsbereich des Impulsformers überschreitet, in diesen zurückgefaltet wird. Eine Darstellung der gesamten Funktion modulo 2π ist dann ausreichend. Für kontinuierliche Phasenfunktionen, die in

jedem Fall eindeutig sind, ergibt sich kein Problem. Beliebige diskrete Phasenfunktionen sind jedoch nicht von solchen zu unterscheiden, auf die eine lineare Phase der Steigung $n \times 2\pi$ pro Datenpunkt mit $n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ addiert wurde. Über die zusätzliche Phase ergibt sich eine zeitliche Periodizität, deren Intervall $T = 2\pi/\Delta\omega$ genau dem Abstand der Vor- und Nachimpulse entspricht. Im Fall linearer Dispersion ergeben sich, wie es auch in Gleichung (5.29) der Fall ist, identische, um Vielfache von T verschobene Impulskopien. Bei nichtlinearer Dispersion entstehen jedoch gechirpte Vor- und Nachimpulse. Das liegt daran, dass die zusätzliche Phase zunächst nur als Funktion der Datenpunkte bzw. Pixelnummer beim LCD linear ist. Eine nichtlineare Beziehung zwischen der Pixel- und der Frequenzachse wandelt die ursprünglich lineare Phase in eine als Funktion der Frequenz nichtlineare Phase um. Man erhält somit gechirpte Vor- und Nachimpulse [211, 214].

Eine wichtige Eigenschaft von LCDs, die bislang noch nicht berücksichtigt wurde, sind die Zwischenräume zweier benachbarter Pixel und die nicht perfekt scharfen Ränder der Pixel selbst. Letztere entstehen schon durch das am Pixelrand nicht unendlich scharf begrenzte elektrische Feld, das eine Restausrichtung der Moleküle des Flüssigkristalls verursacht. So entstehen zwischen den Pixeln unkontrollierte Bereiche entlang der LCD-Maske, für die im wesentlichen angenommen werden kann, dass sich in ihnen ein Zustand einstellt, der zwischen denen der benachbarten Pixel liegt. Eine solche Glättung ist im Allgemeinen nicht schädlich, wohl aber, wenn die zu realisierende Phasenfunktion eine Sprung aufweist. Dann bilden sich in den unkontrollierten Regionen unerwünschte Zwischenwerte aus, die die Impulsformung, wie in Kapitel 8 anhand von Beispielen gezeigt wird, negativ beeinflussen. Insbesondere bei gleichzeitiger Amplituden- und Phasenformung kommt es bei Phasenumbrüchen über das Zusammenspiel der beiden LCD-Lagen zu starken Störungen der Impulsform. Eine Simulation dieser Störungen ist nur eingeschränkt möglich, da dazu der Verlauf der Phase zwischen den Pixeln benötigt wird. Deshalb werden die Simulationen im Rahmen dieser Arbeit auf Gleichung (5.26) beschränkt bleiben und experimentell beobachtete Abweichungen an passender Stelle diskutiert.

Kapitel 6

Planung und Realisierung eines Aufbaus zur Manipulation des Polarisationszustandes ultrakurzer Laserpulse

Im vorangegangenen Kapitel wurden die verschiedenen Techniken zur Formung ultrakurzer Laserpulse vorgestellt und der Einsatz von Flüssigkristalldisplays zur Polarisations-, Amplituden- und Phasenformung ausführlich diskutiert. Nun sollten Details der experimentellen Umsetzung des für diese Arbeit verwendeten Impulsformers erklärt werden.

Dieser beruht auf dem in [209] beschriebenen Gerät. Dessen größter Nachteil war es, dass die handelsüblichen holographischen Reflexionsgitter stark unterschiedliche Effizienzen für die horizontal (p) und die vertikal (s) polarisierte Komponente des elektrischen Feldes aufweisen. Damit ein Polarisationsimpulsformer effizient arbeitet, sollten die Ausgangsintensitäten beider Komponenten identisch sein. Um dies zu erreichen, wurde eine Kompensationsoptik verwendet, die die stärkere Polarisationskomponente abschwächte und die andere ungehindert passieren ließ. Dies resultierte in einen Gesamtdurchsatz von nur 15% der einfallenden Intensität [210]. Durch den Einsatz neuartiger Gitter, der sogenannten Volume Phase Holographic-Gitter [215, 216], konnte dieser deutlich erhöht werden. Im Folgenden werden zunächst diese Gitter näher erläutert. Der zweite Abschnitt dieses Kapitels wird sich dann der experimentellen Umsetzung eines verbesserten Impulsformeraufbaus widmen.

6.1 Volume Phase Holographic-Gitter

Diese ursprünglich für astronomische Anwendungen hergestellten Transmissionsgitter [215, 216, 218–220], bestehen aus einer zwischen zwei Glassubstraten einge-

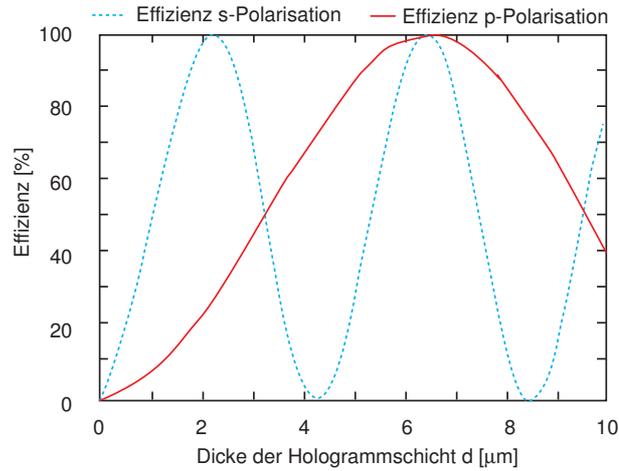


Abbildung 6.1: Variation der Schichtdicke eines Volume Phase Holographic-Gitters. Für feste Strichzahl und festen Verkipfungswinkel Φ bewirkt eine Variation der Schichtdicke d eine starke Veränderung der Effizienzen für horizontal (p – durchgezogene Linie) und vertikal (s – gestrichelte Linie) polarisiertes Licht. Bei einer Schichtdicke von $6,5 \mu\text{m}$ erhält man eine Effizienz von nahezu 100% für beide Komponenten. (Abbildung nach [217].)

brachten dichromatischen Gelatineschicht von einigen Mikrometern Dicke. Mit einem holographischen Verfahren können in diese Schicht sinusförmige Modulationen des Brechungsindex eingeprägt werden. Zudem kann diese Modulation gegen die Gitteroberfläche um einen Winkel Φ verkippt werden. Wenn Λ der Abstand der Interferenzstreifen ist, ergibt sich für die Gitterperiode:

$$\Lambda_g = \frac{\Lambda}{\cos \Phi}. \quad (6.1)$$

Die Besonderheit von Volume Phase Holographic-Gittern ist, dass man, wie in Abbildung 6.1 gezeigt, durch Variation der Dicke d der holographischen Schicht die Effizienzen in den beiden Polarisationskomponenten stark verändern kann. War es in der astronomische Anwendung ursprünglich wünschenswert eine möglichst perfekte Unterdrückung des vertikal polarisierten Lichtes zu erreichen, so weisen die idealen Gitter für Polarisationsimpulsformung möglichst ähnliche und möglichst hohe Effizienzen in beiden Polarisationsrichtungen auf. Tatsächlich kann eine Effizienz von fast 100% sowohl für die s- und als auch für die p-Komponente erzielt werden. Durch die Verwendung von Gittern mit diesen Eigenschaften im Nulldispersionskompressor kann also auf die oben beschriebene Abschwächung der stärkeren Polarisationskomponente verzichtet werden.

Wie aber werden Volume Phase Holographic-Gitter beschrieben? Zunächst gilt, wie bei herkömmlichen Gittern auch, für die spektrale Ordnung m und Licht der Wellenlänge λ die bekannte Gittergleichung:

$$\frac{m\lambda}{n_i} = \Lambda_g (\sin \alpha_i + \sin \beta_i). \quad (6.2)$$

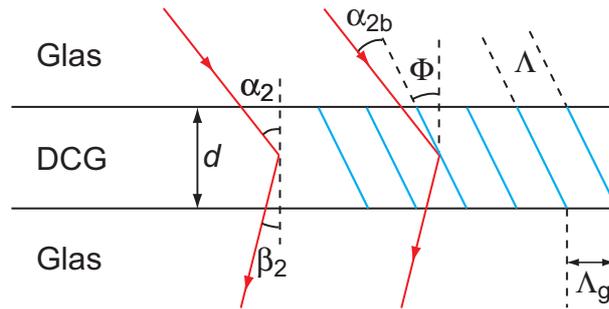


Abbildung 6.2: Querschnitt durch ein Volume Phase Holographic-Gitter. Gezeigt ist nur die Grenzschicht Glas – Dichromatische Gelatine (DCG) – Glas. Die Lichtstrahlen (rote Linien), für die die herkömmliche Gittergleichung gilt, fallen unter dem Winkel α_2 ein und unter dem Winkel β_2 aus. Die um den Winkel Φ verkippten sinusförmigen Modulationen im gegenseitigen Abstand Λ sind durch blaue Linien angedeutet.

Der Index i bezeichnet das jeweilige Medium, unterscheidet also zwischen Luft ($i = 0$), Glassubstrat ($i = 1$) und holographischer Schicht ($i = 2$). Wie in Abbildung 6.2 zu sehen, ist α_i der jeweils zum Lot hin gemessene Einfallswinkel und β_i der entsprechende Austrittswinkel.

Zusätzlich hat jedoch die Tatsache, dass die Interferenzmuster in der holographischen Schicht eine echte Volumenausdehnung besitzen, den Effekt, dass das Licht eine „kristallähnliche“ Modulation des Brechungsindex „sieht“. Wie auch bei der Bragg-Beugung in Kristallen, wird die Beugungseffizienz durch konstruktive Interferenz deutlich erhöht, wenn das Licht an der Ebene der Interferenzstreifen reflektiert wird:

$$\beta_2 + \Phi = \alpha_2 - \Phi. \quad (6.3)$$

Setzt man diese Bedingung in Gleichung (6.2) ein, so erhält man nach einigen elementaren Umformungen folgenden, Bragg-Bedingung genannten, Ausdruck:

$$\frac{m\lambda}{n_2} = 2\Lambda \sin \alpha_{2b}. \quad (6.4)$$

Trifft man das Gitter unter dem Winkel $\alpha_{2b} = \alpha_2 - \Phi$, so erhält man konstruktive Interferenz aller Teilwellen im Gitter. Dieser Winkel wird deshalb auch Bragg-Winkel genannt. Wird die Braggbedingung nicht erfüllt, das heißt, sind Wellenlänge oder Einfallswinkel nicht mit Bedingung (6.4) vereinbar, so wird das einfallende Licht nicht gebeugt, sondern durchquert das Gitter unabgelenkt. Durch geschickte Wahl der Gitterparameter ist es jedoch möglich, trotzdem Gitter einer gewissen Bandbreite zu produzieren. Für eine gegebene Zentralwellenlänge λ_0 und eine gewünschte Strichzahl können die Parameter Λ , d und Φ nach der Kogelnik-Methode [215, 216, 221] so angepasst werden, dass ein Gitter den gewünschten Anforderungen entspricht.

Die in unserem Aufbau verwendeten Gitter wurden von der Firma Wasatch Photonics für eine Zentralwellenlänge $\lambda_0 = 800$ nm gefertigt und haben eine Strichzahl

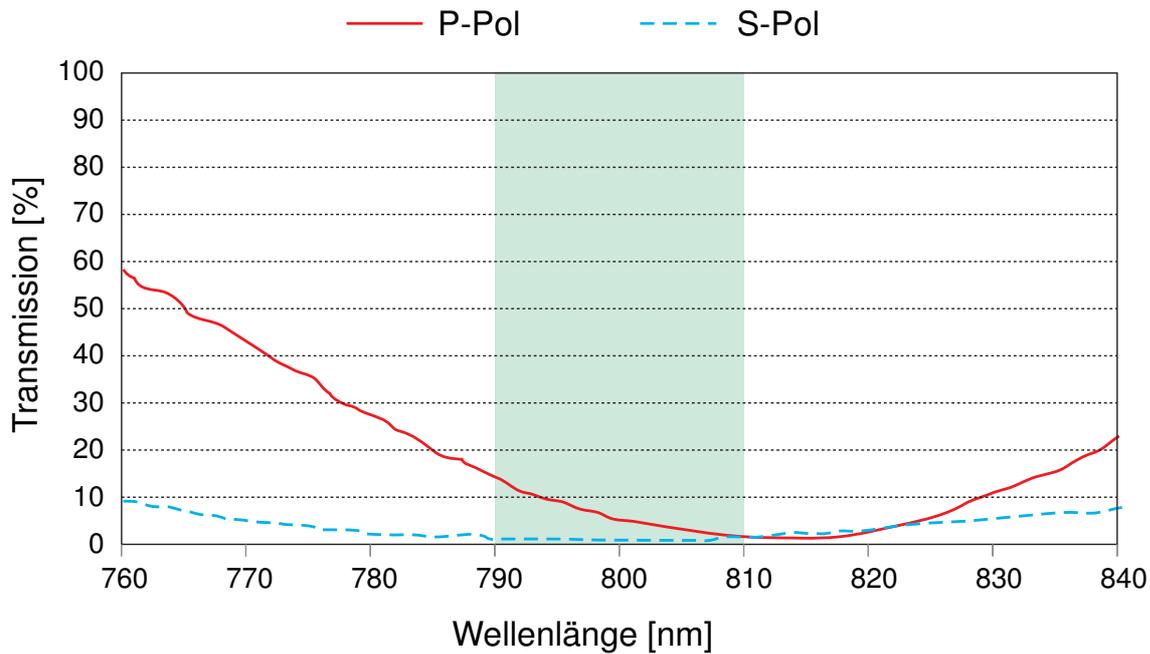


Abbildung 6.3: Transmission in der nullten Ordnung eines unserer Gitter. Dargestellt sind die beiden Polarisationskomponenten (s in blau und p in rot). Innerhalb der Bandbreite unseres Lasers (790 nm bis 810 nm) ist diese Transmission nahezu Null und dies für beide Polarisationskomponenten. (Daten: Wasatch Photonics)

von 1840 mm^{-1} . Für eines unserer Gitter sind die gemessenen Effizienzen für s- und für p-polarisiertes Licht in Abbildung 6.3 dargestellt. Gezeigt ist die Intensität in der nullten Beugungsordnung, die für ein ideales Gitter gleich Null sein sollte. In dem von der Bandbreite unseres Lasers abgedeckten Bereich (790 nm bis 810 nm, hellgrün hinterlegt) ist diese Intensität tatsächlich sehr klein und für beide Polarisationskomponenten nahezu identisch.

6.2 Experimentelle Umsetzung

Der erste Schritt zur Verbesserung des Aufbaus aus [209] war es, die reflektiven Gitter durch die im vorangehenden Abschnitt beschriebenen Volume Phase Holographic-Gitter zu ersetzen. Dies erforderte einen Umbau, da sich der Strahlenverlauf durch die Verwendung von Transmissionsgittern deutlich geändert hat. In Abbildung 6.4 ist der neue Aufbau schematisch dargestellt. Durch ein Teleskop (T) wird zunächst der Durchmesser des ungeformten Laserstrahles auf die Höhe der LCD-Pixel angepasst. Anschließend wird ein kleiner Anteil von 4% zur späteren Charakterisierung des geformten Laserpulses am Strahlteiler (ST1) abgezweigt. Der Rest des Strahles wird durch den Einkoppelspiegel (EKS) unter dem Braggwinkel von $47,4^\circ$ auf das erste Gitter (G1) gelenkt. Dort wird das Licht in seine spektralen Komponenten aufgespalten und trifft auf einen Zylinderspiegel (ZL), der sich

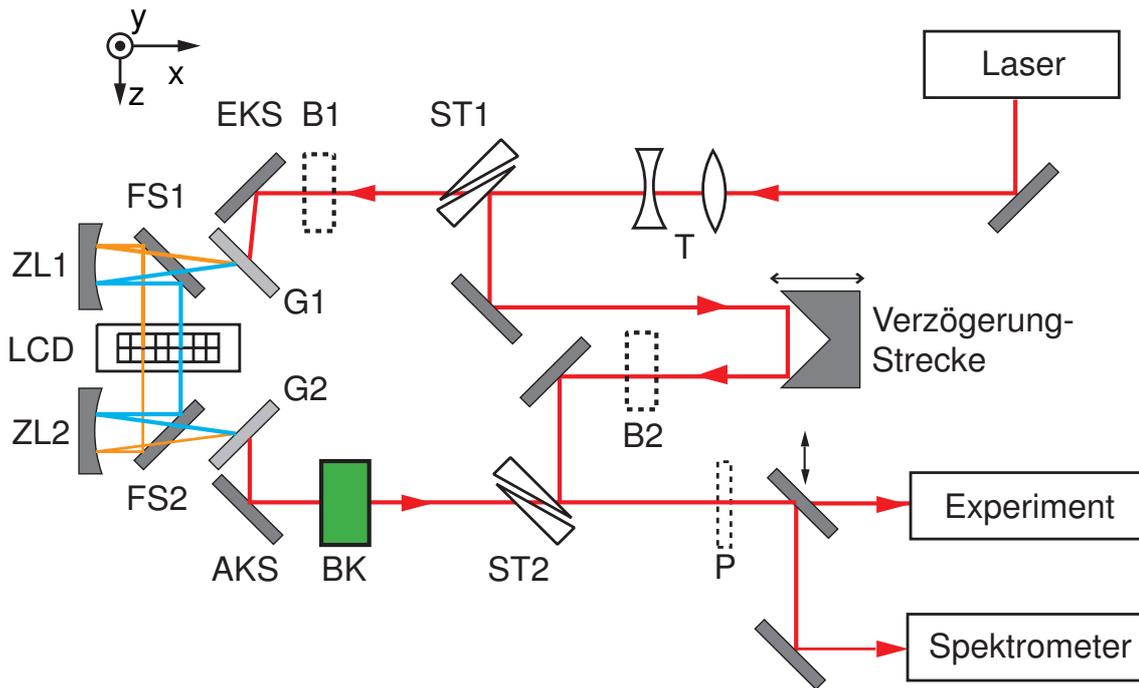


Abbildung 6.4: Schematischer Aufbau des verbesserten Polarisationsformers. Mit einem Teleskop (T) wird der Strahldurchmesser an die Höhe der Pixel des LCD angepasst. Der Referenzimpuls zur Charakterisierung des geformten Impulses mittels spektraler Interferometrie wird am ersten Strahlteiler (ST1) abgetrennt und am zweiten Strahlteiler (ST2) wieder rekombiniert. Der eigentliche Impulsformer besteht aus zwei Transmissionsgittern (G), zwei Zylinderspiegeln (ZL), zwei Faltungsspiegeln (FS) und dem LCD. Der Einkoppelspiegel (EKS) stellt sicher, dass das Gitter unter seinem Bragg-Winkel von $47,4^\circ$ getroffen wird. Der Auskoppelspiegel (AKS) richtet den geformten Strahl korrekt auf den Berek-Kompensator (BK) aus.

im Abstand einer Brennweite f vom Gitter entfernt befindet. Nach diesem Spiegel verlaufen die Farben parallel und werden in der Fourierebene, die sich im Abstand f von der Zylinderlinse befindet, fokussiert. Der auf Grund der Geometrie notwendige Höhenversatz des Strahles wird zwischen Zylinderspiegel und Faltspiegel (FS1) eingeführt, so dass die Strahlen parallel zum optischen Tisch auf das LCD treffen. Auf der anderen Seite der Fourierebene befindet sich ein genau identischer Aufbau, weshalb der „geformte“ Laserimpuls bei inaktivem LCD genau dem Ungeformten entspricht. Zur Charakterisierung des Impulsformers und der geformten Impulse wurde die Methode der spektralen Interferometrie gewählt, die schon in Abschnitt 4.2.3 beschrieben wurde. Die experimentelle Jones-Matrix (siehe Gleichung (5.12)) wurde wie in Abschnitt 5.2.2 erklärt ermittelt und ist in Abbildung 6.5(a) und (b) in Amplitude und Phase dargestellt. Obwohl der Gesamtdurchsatz für die s- und die p-Polarisation mit etwa 40% hoch und vor allem für beide Komponenten gleich ist, sieht man an den Jones-Matrizen (Abbildung 6.5(a)) deutlich, dass die Kopplung zwischen ihnen unerwünscht groß ist. Die Koeffizienten der Nebendiagonalelemente

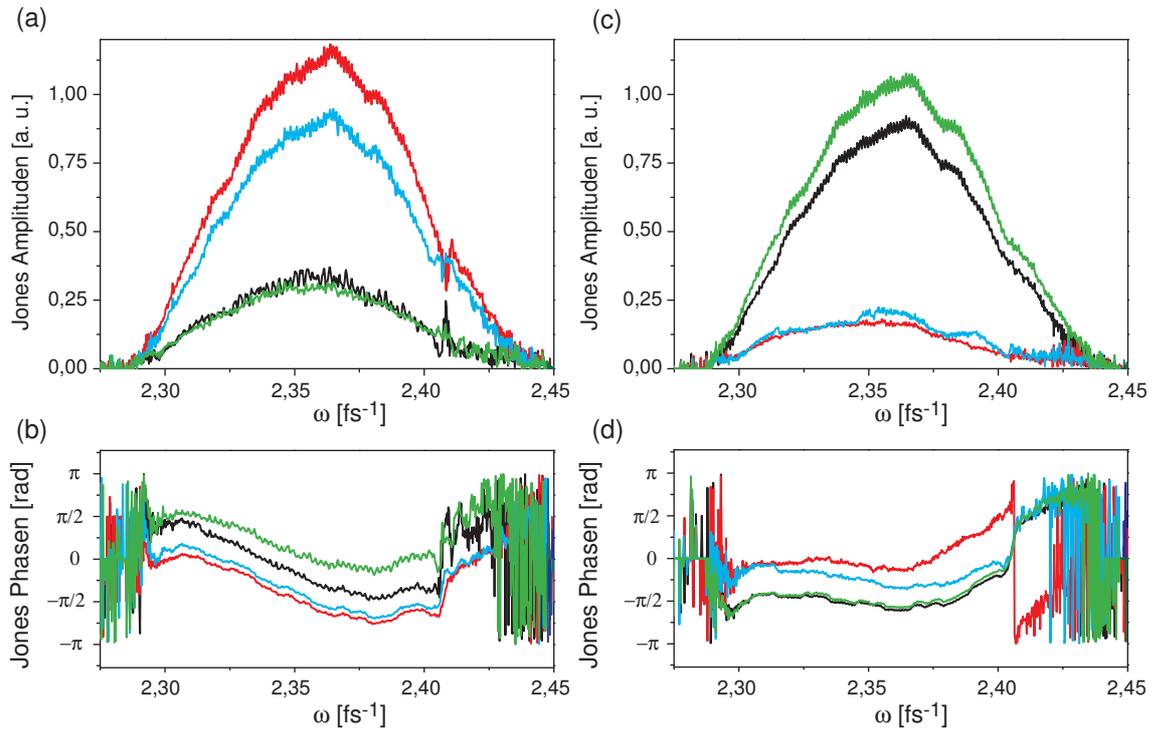


Abbildung 6.5: Experimentelle Jones-Matrizen für den verbesserten Polarisationsimpulsformer. Die Amplituden sind in der oberen Reihe gezeigt: (a) Nach Ersetzen der reflektiven Gitter durch Volume Phase Holographic-Gitter. (c) Mit einem passend eingestellten Berek-Kompensator (BK) nach dem Nulldispersionskompressor. Die verschiedenen Matrix-Elemente sind in unterschiedlichen Farben dargestellt: a_{11} in Schwarz, a_{22} in Grün, a_{12} in Rot und a_{21} in Blau. Die entsprechenden Phasen sind in der unteren Reihe abgebildet: (b) Ohne Berek-Kompensator. (d) Mit Berek-Kompensator. Durch Einbringen des Berek-Kompensators konnte erreicht werden, dass die Nebendiagonalelemente im Vergleich zu den Diagonalelementen klein werden, das heisst, dass wenig Kopplung zwischen den beiden Polarisationskomponenten auftritt.

der experimentellen Jones-Matrix a_{12} (rot) und a_{21} (blau) sind wesentlich höher als die der Diagonalelemente a_{11} (schwarz) und a_{22} (grün). Dies entspricht in keiner Weise der idealen Jones-Matrix eines Impulsformers aus Gleichung (5.13).

Es hat sich jedoch gezeigt, dass dieses Problem durch Einbringen eines sorgfältig justierten Berek-Kompensators (BK) in den Strahlengang nach dem Nulldispersionskompressor behoben werden kann. Ein Berek-Kompensator [222] ist eine variable Wellenplatte, die man für innerhalb eines gegebenen Intervalls frei wählbare Wellenlängen auf beliebige Verzögerungen einstellen kann. Die Amplitude und Phase der daraus resultierenden experimentellen Jones-Matrix ist in Abbildung 6.5(c) und (d) gezeigt. Nun sind die Koeffizienten der Nebendiagonalelemente a_{12} (rot) und a_{21} (blau) deutlich schwächer als die der Diagonalelemente a_{11} (schwarz) und a_{22} (grün). Zudem ist die Amplitude der Koeffizienten der beiden Diagonalelemente fast gleich groß, so dass die experimentelle Jones-Matrix der idealen recht nahe kommt. Zum

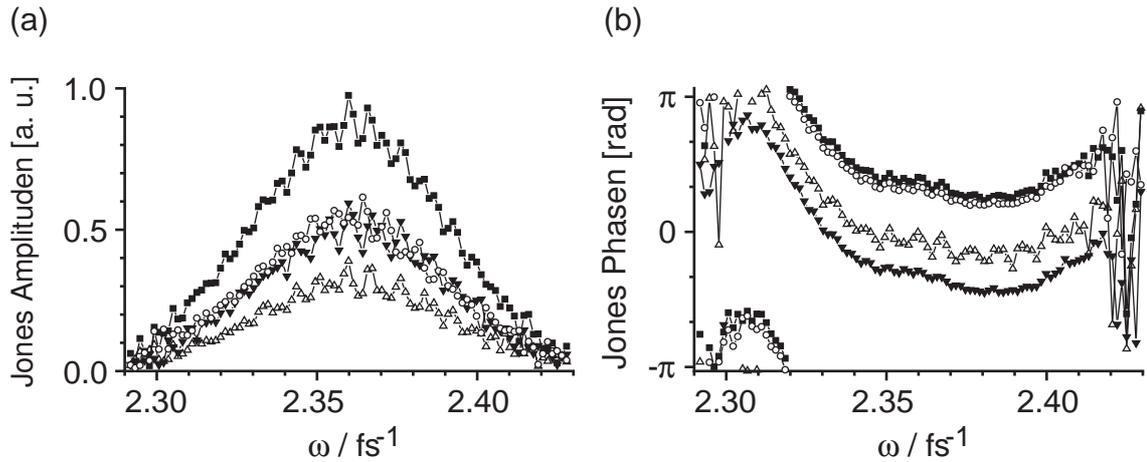


Abbildung 6.6: Experimentelle Jones-Matrizen des Polarisationsimpulsformers aus [209]. Gezeigt sind (a) die Amplituden und (b) die Phase der Koeffizienten der Jones-Matrix. Dabei entspricht a_{11} den ausgefüllten schwarzen Quadraten, a_{22} den offenen Dreiecken, a_{12} den offenen Kreisen und a_{21} den gefüllten Dreiecken. Die Amplituden der Koeffizienten der Diagonalelemente a_{11} und a_{22} sind stark unterschiedlich. Insbesondere sind die Amplituden der Koeffizienten der Nebendiagonalelemente a_{12} und a_{21} höher als die des Koeffizienten a_{22} . Es liegt somit eine starke Koppelung der beiden Polarisationskomponenten vor. Der Polarisationsimpulsformer entspricht keinesfalls dem in Abschnitt 5.2.2 beschriebenen idealen Impulsformer.

Vergleich ist auch die Jones-Matrix des alten Setups aus [209] gezeigt. Hier haben die Koeffizienten der Diagonalelemente deutlich unterschiedliche Amplituden, was auf die stark polarisationsabhängige Effizienz der verwendeten Gitter zurückzuführen ist. Weiterhin sind die Amplituden der Koeffizienten der Nebendiagonalelemente a_{12} und a_{21} höher als die des Koeffizienten a_{22} . Die Jones-Matrix entspricht also in keiner Weise der aus Gleichung (5.13). Hinzu kommt noch der geringe Durchsatz von nur 15%.

Der verbesserte Aufbau hingegen hat inklusive Berek-Kompensator einen Gesamtdurchsatz von 37% und eine (fast) ideale Jones-Matrix. Obwohl es wünschenswert gewesen wäre, die Nebendiagonalelemente in dieser Matrix komplett zu unterdrücken, kann man zumindest von weitgehend entkoppelten Polarisationskomponenten ausgehen. Der verbesserte Aufbau wurde inzwischen zu Kontrollexperimenten an Nanostrukturen [71] und zur Erzeugung ultrakurzer polarisationsgeformter Laserpulse im ultravioletten Spektralbereich [223] eingesetzt und wird im Rahmen dieser Arbeit zur gleichzeitigen Variation der Amplitude und der Phase ultrakurzer Laserpulse (vergleiche Kapitel 5.2.3) verwendet.

Kapitel 7

Die von Neumann-Darstellung

Kombinierte Zeit-Frequenzdarstellungen ultrakurzer Laserpulse erfreuen sich in der Quantenkontrolle großer Beliebtheit, da sie es ermöglichen, deren oft komplizierte zeitliche und spektrale Eigenschaften auf intuitive Weise zu erfassen. Vor allem die Wigner- und die Husimi-Darstellung (siehe Abschnitt 3.2) haben sich in der Analyse optimaler Impulsformen durchgesetzt [38, 54, 55, 101, 123, 150, 152, 224–228]. Neben dem großen Vorteil der besseren Interpretierbarkeit haben beide Darstellungen, wie schon in Abschnitt 3.2 gezeigt, auch Nachteile. So zeigt die Wigner-Darstellung unphysikalische Interferenzstrukturen, in denen sie auch negative Werte annimmt. Die Husimi-Darstellung nimmt ausschließlich positive Werte an und kann deshalb als Wahrscheinlichkeitsverteilung interpretiert werden. Allerdings gibt es keine direkte Umkehrung der Husimi-Transformation, so dass kein geschlossener Ausdruck zur Zurückgewinnung des elektrischen Feldes angegeben werden kann.

Als Alternative wird in dieser Arbeit die von Neumann-Darstellung eingeführt [229], die die intuitive Interpretierbarkeit der Husimi-Darstellung mit vollständiger Rekonstruierbarkeit vereint. Es handelt sich um eine komplexwertige Darstellung, deren Intensität unter bestimmten Umständen eine Interpretation als Photonen-Detektionswahrscheinlichkeit zulässt und deren Phase, wie in Abschnitt 7.3 näher erläutert, zusätzliche Informationen enthält.

Die von Neumann-Darstellung ist eng mit der Husimi-Darstellung verwandt – auch sie ist eine Entwicklung des elektrischen Feldes in kohärente Zustände. Als Basis wird allerdings nur eine Teilmenge der kontinuierlich über den Phasenraum verteilten Zustände benutzt. Dies macht die von Neumann-Darstellung insbesondere in Hinblick auf die in ihr enthaltene Information besonders interessant. Wie in den Abschnitten 7.1 und 7.2 gezeigt werden wird, genügen N Phasenraumpunkte, um ein an N Punkten im Frequenzraum bekanntes Signal darzustellen.

Die genaue physikalische Bedeutung der komplexwertigen von Neumann-Koeffizienten wird in Abschnitt 7.3 untersucht. Anschließend werden in Abschnitt 7.4 die verschiedenen in dieser Arbeit vorgestellten Darstellungen ultrakurzer Lichtimpulse vergleichend gegenübergestellt. Als Abschluss werden potentielle Anwendungen der von Neumann-Darstellung in der Quantenkontrolle, wie zum Beispiel die

Vermessung von Fitnesslandschaften, die Analyse komplizierter Laserpulse oder sogar die Entwicklung „intelligenter“ Lernalgorithmen, präsentiert.

7.1 Formalismus

Grundlage der von Neumann-Darstellung sind die aus der Quantenmechanik bekannten kohärenten Zustände [12, 160]. Diese bilden eine nichtorthogonale Basis aus komplexwertigen Gaußfunktionen, die kontinuierlich über den gesamten Phasenraum verteilt sind und zur Beschreibung quantenmechanischer Wellenfunktionen benutzt werden [12, 230]. Die einzelnen Basisfunktionen haben als Funktion des Ortes die Form:

$$g_{p_0 q_0}(q) = \left(\frac{2\alpha}{\pi}\right)^{1/4} \exp[-\alpha(q - q_0)^2 - ip_0 q], \quad (7.1)$$

wobei der Vorfaktor $(2\alpha/\pi)^{1/4}$ die Normierung gewährleistet und der Parameter α ein Maß für die Breite der Gaußfunktionen ist. Durch Anwendung der Fouriertransformation erhält man den entsprechenden Funktionsverlauf im Impulsraum in dem sich wieder eine Gaußfunktion ergibt. Im Orts-Impuls-Phasenraum liegt also eine zweidimensionale Gaußfunktion vor, die um den Punkt (p_0, q_0) zentriert ist.

Betrachtet man die Erwartungswerte für Ort und Impuls eines kohärenten Zustandes, so erhält man unabhängig von der Wahl des Parameters α ¹:

$$\langle q \rangle = \langle q_0, p_0; \hat{q} | q_0, p_0; \alpha \rangle = q_0 \quad (7.2)$$

$$\langle p \rangle = \langle q_0, p_0; \hat{p} | q_0, p_0; \alpha \rangle = p_0 \quad (7.3)$$

Sie entsprechen also genau demjenigen Punkt (p_0, q_0) im Phasenraum, um den die Gaußfunktion zentriert ist. Dies wird besonders deutlich, wenn man die Wignertransformierte (siehe Abschnitt 3.2.1, Gleichung (3.28)) eines kohärenten Zustandes betrachtet²:

$$W(g; p, q) = \exp\left[-2\alpha(q - q_0)^2 - \frac{1}{2\alpha}(p - p_0)^2\right]. \quad (7.4)$$

Es handelt sich um eine zweidimensionale Gaußfunktion mit Zentrum (p_0, q_0) . Diese entspricht einer ellipsenförmigen Quasi-Wahrscheinlichkeitsverteilung im Phasenraum, deren Elliptizität vom Parameter α bestimmt wird. Man beachte, dass sich die Breiten in Orts- und in Impuls-Richtung reziprok zueinander verhalten. Somit wird der Heisenbergschen Unschärferelation Genüge getan, da eine hohe Auflösung in der Ortsvariablen eine schlechte Auflösung im Impuls nach sich zieht. Die Variation von α bestimmt demnach, über welche der beiden konjugierten Variablen mehr Information erhalten wird. Die kohärenten Zustände im Zeit-Frequenz-Phasenraum

¹Zur Vereinfachung der Gleichungen wurde auf die Braket-Schreibweise zurückgegriffen, in der $\langle q_0, p_0; \alpha |$ für g_{p_0, q_0}^* und $|q_0, p_0; \alpha \rangle$ für g_{p_0, q_0} steht.

²Es wird o.B.d.A. $\alpha \in \mathbb{R}$ angenommen.

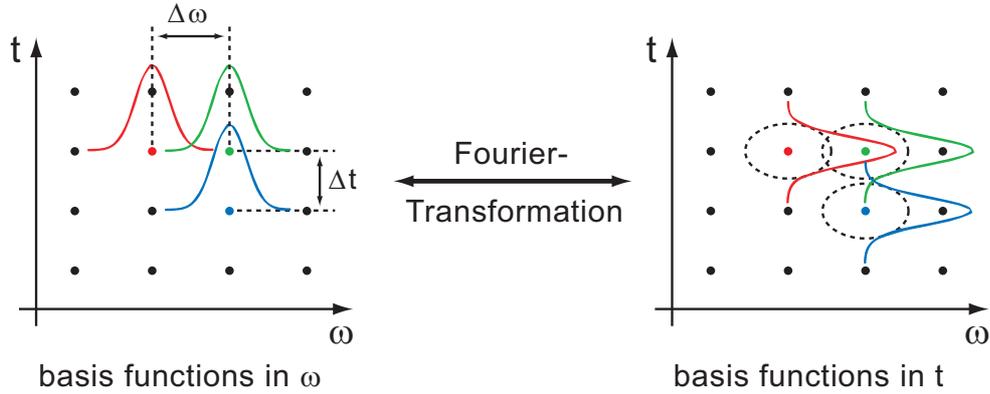


Abbildung 7.1: Von Neumann-Basisfunktionen im Zeit-Frequenz-Phasenraum. Es wurde ein Raster mit Abstand $\Delta\omega$ in Frequenz- und Δt in Zeitrichtung gewählt, weshalb das Phasenraumvolumen pro Basisfunktion $V = \Delta\omega \cdot \Delta t$ beträgt. Wie angedeutet sind die Basisfunktionen, deren Absolutwerte eingezeichnet sind, im Zeitraum mit denen im Frequenzraum über die Fouriertransformation verknüpft. Die gestrichelt eingezeichneten Ellipsen geben die Halbwertsfläche der Wigner-Quasi-Wahrscheinlichkeitsverteilung der Basisfunktionen an.

erhält man, indem man wie in Abschnitt 3.2 erklärt, p durch ω und q durch t ersetzt:

$$\alpha_{\omega_n t_m}(\omega) = \left(\frac{2\alpha}{\pi}\right)^{1/4} \exp[-\alpha(\omega - \omega_n)^2 - it_m(\omega - \omega_n)], \quad (7.5)$$

und

$$\tilde{\alpha}_{\omega_n t_m}(t) = \left(\frac{1}{2\alpha\pi}\right)^{1/4} \exp\left[-\frac{1}{4\alpha}(t - t_m)^2 - i\omega_n t\right]. \quad (7.6)$$

Die beiden Sätze von Basisfunktionen $\alpha_{\omega_n t_m}$ und $\tilde{\alpha}_{\omega_n t_m}$ sind gleichwertig und, wie in Abbildung 7.1 anschaulich dargestellt, durch die Fourier-Transformation miteinander verbunden.

Zwar kann mit diesen Funktionen jedes beliebige elektrische Feld dargestellt werden, doch ist die Basis dadurch, dass ω_n und t_m jeden Wert ω beziehungsweise t annehmen können, extrem übervollständig. Es existieren deshalb zahlreiche vollständige oder auch übervollständige Untermengen der Gesamtheit der Basisfunktionen [230, 231]. Diese müssen allerdings bestimmte Bedingungen erfüllen: So muss gewährleistet sein, dass, abgesehen vom Spezialfall alleiniger Auflösung in Frequenz- oder Zeitrichtung, weiterhin der gesamte Phasenraum abgedeckt wird. Dies bedingt auch weiterhin eine unendlich große Anzahl an Basisfunktionen. Zudem darf, da jede Basisfunktion nur ein endliches Phasenraumvolumen abdeckt, die Dichte der Basisfunktionen nicht zu gering werden. Die Wigner-Wahrscheinlichkeitsverteilung in Abbildung 7.1 zeigt als gestrichelte Ellipse die Halbwertsfläche einer Basisfunktion. Perelomov [161] konnte zeigen, dass das maximale, von einer Basisfunktion abdeckbare Phasenraumvolumen V 2π beträgt. Eine Basis, die auf einem unendlich ausgedehnten Gitter im Phasen-

raum definiert ist und für die zudem $V = \Delta\omega \cdot \Delta t = 2\pi$ gilt, ist somit vollständig³. Der ursprünglich von von Neumann vorgeschlagene Satz von Funktionen [160] erfüllt diese Bedingungen exakt und wird im Folgenden als von Neumann-Basis bezeichnet. Ist das Phasenraumvolumen pro Funktion geringer als 2π , so ist die Basis übervollständig, das heißt also umgekehrt, wenn das Phasenraumvolumen pro Funktion größer als 2π ist, liegt ein unvollständiger Satz von Funktionen vor.

Für eine numerische Anwendung ist eine solche unendlich ausgedehnte Basis in jedem Fall nicht handhabbar, weshalb man sich stets auf einen Bereich im Phasenraum einschränkt, den das darzustellende Signal auf keinen Fall überschreitet. Da im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich Laserpulse dargestellt werden sollen, die experimentell realisierbar sind, liegen den folgenden Betrachtungen die Parameter des verwendeten Impulsformers (siehe Abschnitte 5.2 und 6.2) zu Grunde. Jedes solche Signal $E^+(\omega)$ liegt in einem festen Frequenzintervall von ω_{min} bis $\omega_{max} = \omega_{min} + \Omega$ vor. Ω ist hierbei der vom Impulsformer abgedeckte Spektralbereich, der an N Messpunkten abgetastet wird. Das entsprechende zeitliche Signal $E^+(t)$ erhält man, wie in Abschnitt 3.1 beschrieben, mittels Fouriertransformation von $E^+(\omega)$. Wenn $\delta\omega = \Omega/N$ der Abstand der Samplingpunkte im Frequenzraum ist, so berechnet sich der dazugehörige Frequenzbereich über $T = 2\pi/\delta\omega$. Umgekehrt gilt natürlich auch: $\Omega = 2\pi/\delta t$ mit $\delta t = T/N$.

Der betrachtete Bereich des Phasenraumes deckt alle mit dem Impulsformer herstellbaren Signale vollständig ab. Deshalb wird er für die von Neumann-Darstellung übernommen und fortan auch von Neumann-Ebene genannt. Für das Gesamtvolumen V_{ges} der von Neumann-Ebene im Phasenraum gilt mit den oben diskutierten Beziehungen zwischen Ω , T und N :

$$V_{ges} = \Omega \cdot T = \frac{2\pi}{\delta t} T = 2\pi N. \quad (7.7)$$

Das Phasenraumvolumen ist also proportional zur Anzahl der Messpunkte N des Signals, wobei jedem Messpunkt ein Volumen von 2π entspricht. Es sind also genau N Punkte in der von Neumann-Ebene notwendig, um diese auf eineindeutige Weise abzudecken. Jeder dieser Punkte entspricht dabei einer von Neumann-Basisfunktion, die um ihn zentriert ist. Da eine jede solche Funktion ein Phasenraumvolumen von genau 2π abdeckt, handelt es sich somit um eine vollständige Basis⁴. Dies bestätigt die intuitive Annahme, dass unter eineindeutigen Transformationen stets die gleiche Anzahl von Punkten zur Darstellung eines Signals benötigt wird. Somit enthält die von Neumann-Darstellung im Gegensatz zur Husimi- oder Wigner-Darstellung keine redundanten Informationen. Infolgedessen ist die Auflösung der von Neumann-Darstellung in Zeit- beziehungsweise in Frequenzrichtung natürlich wesentlich geringer als die des Ausgangssignals im Zeit- oder Frequenzraum. Der Formalismus der von Neumann-Darstellung macht allerdings keine Aussagen darüber, wie die N

³Genauer gesagt ist eine solche Basis um genau eine Basisfunktion übervollständig, was für praktische Anwendungen jedoch irrelevant ist.

⁴In dem betrachteten Bereich des Phasenraumes. Die Bedingung einer unendlich ausgedehnten Basis ist bei numerischen Berechnungen natürlich nicht erfüllt.

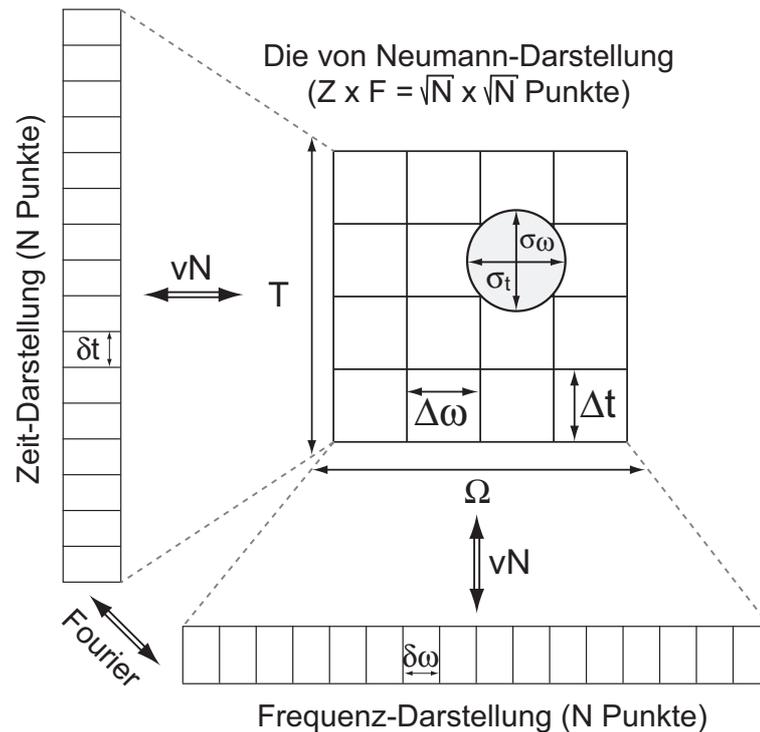


Abbildung 7.2: Die von Neumann-Ebene. Ein Signal ist im Zeit- oder im Frequenzraum an N Punkten in Amplitude und Phase gegeben und wird in die von Neumann-Darstellung transformiert. Diese kombinierte Zeit-Frequenz-Darstellung ist auf einer von Neumann-Ebene genannten Teilbereich des Phasenraumes definiert. Er umfasst die komplette Zeitspanne T und den gesamten Spektralbereich Ω des Ausgangssignals. Für die Darstellung im Zeit-Frequenzraum werden ebenfalls nur N Punkte benötigt, weshalb die resultierende Auflösung $\Delta\omega = \delta\omega\sqrt{N}$ und $\Delta t = \delta t\sqrt{N}$ wesentlich geringer als die des Ausgangssignals ist. Zusätzlich sind die Halbwertsbreiten σ_ω und σ_t der Basisfunktionen relativ zum Raster eingezeichnet.

Punkte im Phasenraum verteilt werden sollten. Die Anzahl Z der Punkte entlang der Zeitachse und F der Punkte entlang der Frequenzachse kann also je nach gewünschter relativer Auflösung frei gewählt werden. Die einzige Bedingung ist, dass ihr Produkt der Gesamtanzahl an von Neumann-Punkten entsprechen muss, also, dass $N = Z \cdot F$ gilt. Wählt man Z oder F gleich N , so erhält man im Extremfall das ursprüngliche Signal oder seine Fouriertransformierte. In der vorliegenden Arbeit sollte die zeitliche möglichst der spektralen Auflösung entsprechen, um beide Dimensionen im Phasenraum gleich zu gewichten. Es wurde also $F = Z = \sqrt{N}$ gewählt. Da für den verwendeten Impulsformer $N = 128$ gilt und 128 keine Quadratzahl ist, wurde die Anzahl der Punkte im Phasenraum auf $N = 121 = 11 \cdot 11$ eingeschränkt. Eine graphische Darstellung der resultierenden von Neumann-Ebene ist in Abbildung 7.2 zu sehen.

Der Parameter α bestimmt die Breite der Basisfunktionen sowohl in der Zeit als

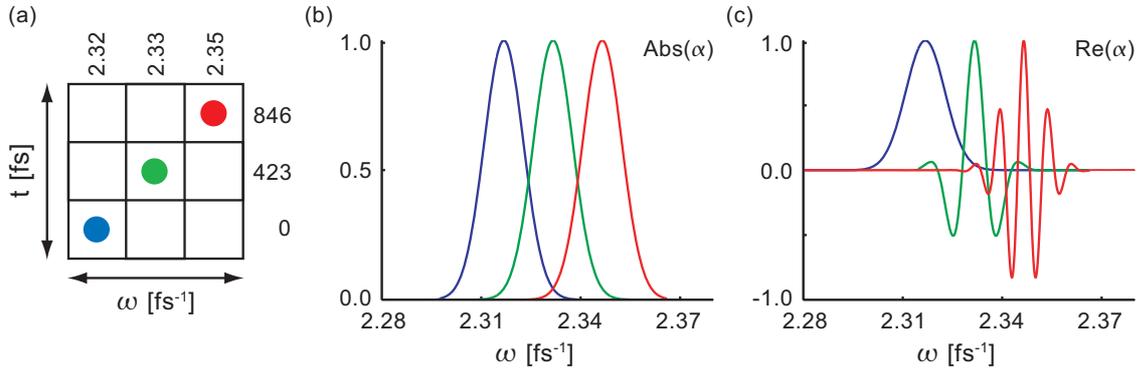


Abbildung 7.3: Von Neumann-Basisfunktionen. (a) Lage der drei Beispielfunktionen in der von Neumann-Ebene. Sie sind entlang einer Diagonalen im Phasenraum angeordnet, liegen also an in Zeit und Frequenz jeweils benachbarten Gitterpunkten. (b) Betrag der einzelnen Funktionen, aufgetragen über der Frequenz. Der spektrale Überlapp benachbarter Funktionen ist deutlich zu erkennen. (c) Realteile der Basisfunktionen. Durch die verschiedenen zeitlichen Positionen $t_m = 0$ fs, $t_m = 423$ fs und $t_m = 846$ fs entstehen unterschiedlich starke Oszillationen im Realteil.

auch in der Frequenz. Für diese Halbwertsbreiten σ_ω und σ_t gilt:

$$\sigma_\omega = \sqrt{\frac{4 \ln 2}{\alpha}}, \quad (7.8)$$

$$\sigma_t = \sqrt{16\alpha \ln 2}. \quad (7.9)$$

Woraus sich ergibt:

$$\alpha = \frac{\sigma_t}{2\sigma_\omega}. \quad (7.10)$$

Des Weiteren ist das Verhältnis der spektralen Halbwertsbreite σ_ω zum Frequenzabstand zweier Basisfunktionen Ω/F gleich dem Verhältnis der zeitlichen Halbwertsbreite σ_t zum Zeitabstand zweier Basisfunktionen T/Z :

$$\frac{F\sigma_\omega}{\Omega} = \frac{Z\sigma_t}{T}. \quad (7.11)$$

Setzt man nun Gleichung (7.10) in (7.11) ein und verwendet, dass $Z = F$ ist, so erhält man schließlich für α :

$$\alpha = \frac{TF}{2\Omega Z} = \frac{T}{2\Omega}. \quad (7.12)$$

Somit sind die Basisfunktionen (7.5) und (7.6) endgültig bestimmt. Zur Veranschaulichung sind drei dieser Funktionen, die entlang einer Diagonalen in der von Neumann-Ebene angeordnet sind, in Abbildung 7.3 dargestellt. Sie entsprechen den Parametern des in dieser Arbeit verwendeten Impulsformers und sind jeweils in Frequenz- und in Zeit-Richtung zueinander benachbart. Daraus resultiert ein deutlicher Überlapp in beiden Richtungen. Dies ist in Abbildung 7.3(b), die den

gaußförmigen Verlauf der Beträge der Basisfunktionen zeigt, gut zu erkennen. Unterscheiden sich die Beträge, abgesehen von ihrer Zentralfrequenz, nicht, so zeigen die Realteile einen deutlichen Einfluss der zeitlichen Verschiebung. Für $t_m = 0$ fs erhält man eine gaußförmige Funktion, bei $t_m = 423$ fs treten erste Oszillationen auf, die für $t_m = 846$ fs schließlich sehr ausgeprägt sind.

Mit den nun vollständig definierten Basisfunktionen können elektrische Felder $|E^+\rangle$ in die von Neumann-Darstellung transformiert werden. Da experimentelle Femtosekundenimpulsformung, wie in Kapitel 5 erklärt, stets im Frequenzraum stattfindet, wird im Folgenden ausschließlich auf Felder im Frequenzraum eingegangen. Die entsprechenden Felder im Zeitraum erhält man dann durch Fouriertransformation (siehe Abschnitt 3.1). Startet man direkt vom zeitlichen elektrischen Feld, so ist das Vorgehen analog zu dem im Frequenzraum.

Die von Neumann-Basis ist eine nichtorthogonale, diskrete Basis, weshalb sich eine nichttriviale Vollständigkeitsrelation ergibt:

$$\mathbf{1} = \sum_{(n,m),(i,j)} |\alpha_{\omega_n t_m}\rangle S_{(n,m),(i,j)}^{-1} \langle \alpha_{\omega_i t_j}|. \quad (7.13)$$

Die Matrix $S_{(n,m),(i,j)}$, die in Form ihrer Inversen in Gleichung (7.13) einfließt, heißt Überlapp-Matrix der Basisfunktionen. Ihre Matrixelemente werden über das Skalarprodukt von jeweils zwei dieser Funktionen berechnet:

$$\begin{aligned} S_{(n,m),(i,j)} &= \langle \alpha_{\omega_n t_m} | \alpha_{\omega_i t_j} \rangle \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \alpha_{\omega_n t_m}^*(\omega) \alpha_{\omega_i t_j}(\omega) d\omega. \end{aligned} \quad (7.14)$$

Läge eine orthogonale Basis vor, so wären nur die Diagonalelemente der Überlapp-Matrix ungleich Null. Dies ist auf Grund der Nichtorthogonalität der von Neumann-Basis nicht der Fall. Bei der Projektion eines Signals auf die einzelnen Basisfunktionen ist die Aufgabe der Überlapp-Matrix den partiellen Überlapp der Basisfunktionen zu korrigieren. Für den übervollständigen Basissatz der kohärenten Zustände, aus dem die von Neumann-Basis durch Selektion passender Funktionen abgeleitet wurde, ist dies nicht notwendig, da es sich hier um eine kontinuierliche Basis handelt. Nimmt man an, dass die Basisfunktionen nicht nur im Intervall von ω_{min} bis ω_{max} , sondern auf der kompletten Frequenzachse definiert sind, so kann man einen analytischen Ausdruck für die Überlapp-Matrix finden (siehe Anhang A):

$$S_{(n,m),(i,j)} = (-1)^{(i-n)(j+m-N-1)} \exp \left\{ -\frac{\pi}{2} [(i-n)^2 + (j-m)^2] \right\} \quad (7.15)$$

Die so gewonnene Matrix kann dann numerisch invertiert und für weitere Berechnungen verwendet werden. Wie man an Gleichung (7.15) erkennt, ist die Überlapp-Matrix reell und symmetrisch, außerdem ist sie unabhängig von den Ausmaßen des betrachteten Phasenraumes. Der Betrag der Überlapp-Matrixelemente hängt einzig und allein vom Abstand $(i-n)^2$ und $(j-m)^2$ der entsprechenden Basisfunktionen

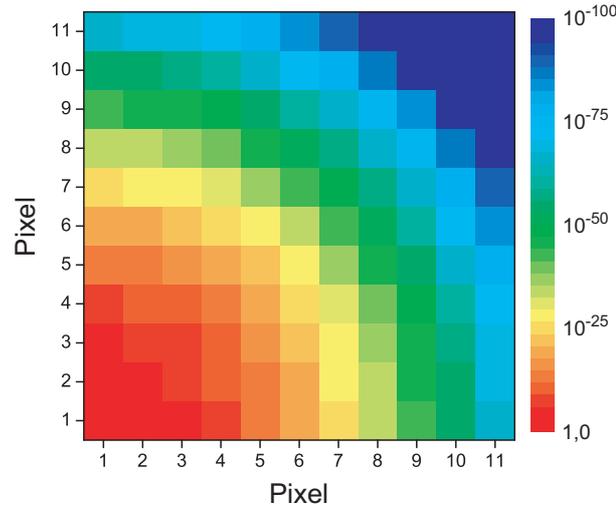


Abbildung 7.4: Überlapp zwischen zwei von Neumann-Basisfunktionen. Der Betrag des Überlapps zwischen zwei Basisfunktionen hängt nur von ihrem Abstand gemessen in Pixeln ab und nimmt mit steigendem Abstand schnell ab. Für den Überlapp einer Basisfunktion mit sich selbst beträgt er 1, für direkt benachbarte Basisfunktionen 0,21 und für diagonal benachbarte Basisfunktionen nur noch 0,04. Für weiter voneinander entfernte Basisfunktionen ist er schon verschwindend gering.

ab. In Abbildung 7.4 ist diese Abhängigkeit des Überlapps vom Abstand der Basisfunktionen dargestellt. Mit zunehmendem Abstand nimmt dieser sehr schnell ab, so dass nur benachbarte Basisfunktionen einen wesentlichen Beitrag leisten.

Nun kann das elektrische Feld $|E^+\rangle$ als Summe über die von Neumann-Basis $|\alpha_{\omega_n t_m}\rangle$ dargestellt werden:

$$|E^+\rangle = \sum_{n,m} Q_{\omega_n t_m} |\alpha_{\omega_n t_m}\rangle \quad (7.16)$$

Die Entwicklungskoeffizienten $Q_{\omega_n t_m}$, die die von Neumann-Darstellung bilden, werden mit Hilfe von Gleichung (7.13) bestimmt:

$$\begin{aligned} Q_{\omega_n, t_m} &= \sum_{i,j} S_{(n,m)(i,j)}^{-1} \langle \alpha_{\omega_i t_j} | E^+ \rangle \\ &= \sum_{i,j} S_{(n,m)(i,j)}^{-1} \int \alpha_{\omega_i t_j}^*(\omega) E^+(\omega) d\omega. \end{aligned} \quad (7.17)$$

Sie sind komplexe Zahlen und werden von nun an getrennt als Intensität und Phase dargestellt. Eine Interpretation dieser Größen wird dann in Abschnitt 7.3 gegeben. Bildet man das Betragsquadrat der Projektion $\langle \alpha_{\omega_i t_j} | E^+ \rangle$, so erhält man die Husimi-Darstellung im Phasenraumpunkt (ω_i, t_j) , wie sie ausgehend von den kohärenten Zuständen in Abschnitt 3.2.2 definiert wurde. Man kann diese Projektionen als komplexwertige, grob gerasterte Variante der Husimi-Darstellung auffassen, weshalb sie im Folgenden einfach als „komplexe“ Husimi-Darstellung bezeichnet werden soll.

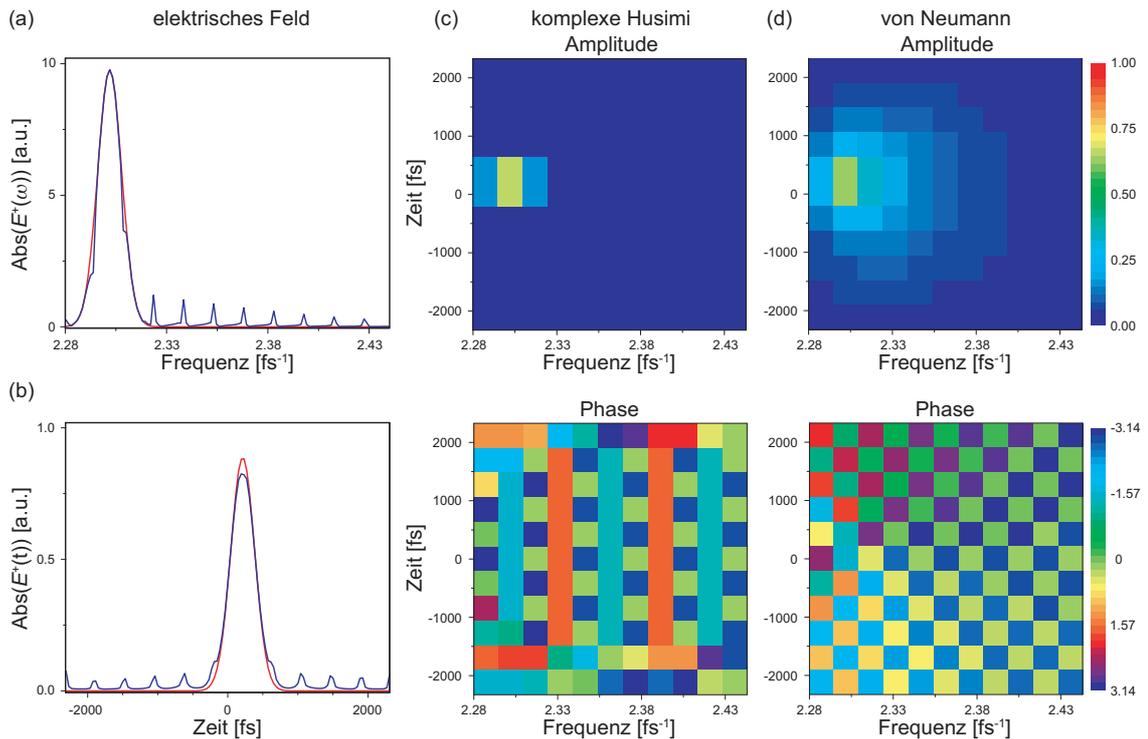


Abbildung 7.5: Beispiel einer von Neumann-Transformation. Es wurde ein elektrisches Feld transformiert, welches die gleiche zeitliche und spektrale Breite wie die von Neumann-Basisfunktionen hat, allerdings im Phasenraum genau zwischen zwei zeitlichen von Neumann-Pixeln zentriert ist. (a) Spektrales elektrisches Feld. Das ursprüngliche Signal ist in rot, das rekonstruierte Signal in blau dargestellt. (b) Zeitliches elektrisches Feld. (c) Komplexe Husimi-Darstellung des elektrischen Feldes. Die Amplitude ist wie erwartet symmetrisch um die zwei Phasenraumpixel bei $t = 423$ fs und $t = 846$ fs verteilt und auf wenige Pixel beschränkt. (d) Die Amplitude der von Neumann-Darstellung hingegen ist über die komplette von Neumann-Ebene ausgeschmiert. Durch das Abschneiden von nicht vernachlässigbarer Intensität, stimmt das aus der von Neumann rekonstruierte Signal (blau) nicht mit dem ursprünglich definierten Signal überein.

7.2 Übertragung auf diskrete, endliche Signale

Mit dem im vorangegangenen Abschnitt vorgestellten Formalismus können in der von Neumann-Ebene definierte Signale verlustfrei zwischen den verschiedenen Darstellungen hin und her transformiert werden. Versucht man dasselbe mit beliebigen im Zeit- oder Frequenzraum definierten Signalen, so treten Probleme mit der erzielten Rekonstruktionsqualität auf. Deshalb wurden verschiedene Lösungsansätze erarbeitet, die im Folgenden erörtert werden sollen.

In Abbildung 7.5 ist ein solcher problematischer Fall gezeigt. Das definierte elektrische Feld (rote Linie) ist in Abbildung 7.5(a) als Funktion der Frequenz und in Abbildung 7.5(b) als Funktion der Zeit dargestellt. Es handelt sich um einen ein-

zelenen Gaußimpuls mit der Breite einer von Neumann-Basisfunktion, dessen zeitliche Mitte genau zwischen zwei von Neumann-Pixeln liegt. Dies ist deutlich an der komplexen Husimi-Darstellung (Abbildung 7.5(c)) zu sehen, in der die Intensität symmetrisch um $t = 635$ fs verteilt ist⁵. Anschließend wurde das elektrische Feld unter Verwendung der inversen Überlapp-Matrix $S_{(n,m)(i,j)}^{-1}$ in die von Neumann-Darstellung (Abbildung 7.5(d)) transformiert, in der erkennbar ist, dass sich die Amplitude nun keinesfalls mehr auf die direkte Umgebung des Gaußimpulses in der von Neumann-Ebene beschränkt. Vielmehr ist der Beitrag auch weiter entfernter Basisfunktionen nicht unerheblich und klingt mit zunehmendem Abstand nur langsam ab. Die Rücktransformation (blaue Linie in Abbildung 7.5(a) und(b)) liefert ein deutlich gestörtes Signal, das dem gaußförmigen Verlauf nicht mehr folgt und zudem in regelmäßigen Abständen Intensitätsspitzen aufweist. Da jedoch eine erneute Transformation dieses deformierten Signals in die von Neumann-Darstellung und zurück keine weiteren Veränderungen ergibt, muss die Ursache der Störungen in der ersten Transformation vom Signal in die von Neumann-Darstellung liegen. Hier kommt es offensichtlich zu Informationsverlust, der dann die Störungen im rekonstruierten Signal verursacht. Dieses Problem tritt bei einer echten, das heißt vollständigen, Basis nicht auf, woraus sich im Umkehrschluss ergibt, dass die verwendeten Basisfunktionen diese Bedingung nicht erfüllen. Da der verwendete Satz von Basisfunktionen nicht den gesamten Phasenraum, sondern nur einen Ausschnitt abdeckt, ist diese Unvollständigkeit nicht weiter verwunderlich. Allerdings weist das transformierte Signal außerhalb des betrachteten Bereichs des Phasenraumes keine Intensität auf und sollte sich deshalb problemlos darstellen lassen. Diese Annahme ist offensichtlich falsch und die Beschränkung des Phasenraumes auf den für das zu transformierende Signal relevanten Bereich für eine verlustfreie Abbildung nicht ausreichend.

Die Ursache des Problems ist das Ausschmieren der Intensität der von Neumann-Darstellung weit über den betrachteten Bereich des Phasenraumes hinaus. Zwar betragen die Intensitäten der „abgeschnittenen“ von Neumann-Pixel nur noch 0,2% bis 2% der Gesamtintensität, jedoch handelt es sich um sehr viele mit kleinen Intensitäten beitragenden Basisfunktion, die vernachlässigt werden. Doch warum werden so viele von ihnen zur korrekten Darstellung des Signals benötigt? In dem Beispiel aus Abbildung 7.5 handelt es sich um ein gaußförmiges Signal, das sich in der Mitte von zwei gaußförmigen Basisfunktionen befindet und durch diese dargestellt werden soll. Allerdings ergibt eine Linearkombination zweier Gaußfunktionen nur dann wieder eine Gaußfunktion wenn es sich um identische Funktionen handelt. Für geringe Abstände der beiden Basisfunktionen erhält man noch eine gute Näherung des gaußförmigen Verlaufs, jedoch wird das Ergebnis mit zunehmenden Abstand immer weniger akzeptabel. Um das Signal dennoch durch die von Neumann-Basisfunktionen darzustellen, muss ein größerer Basissatz genutzt werden. Dieser muss solange erweitert werden bis die zusätzlichen Basisfunktionen durch Interferenz über ihre relativen Phasen das gewünschte Signal ergeben. Dies wird anhand des gezeigten Beispiels gut verdeutlicht. In denjenigen Bereichen, in denen die von Neumann-Intensität stark

⁵Die nächsten Pixel in der Zeit sind $t = 423$ fs und $t = 846$ fs.

ausschmiert, ist die relative Phase benachbarter von Neumann-Basisfunktionen nahe an π rad. Somit wird gewährleistet, dass sich die meisten Beiträge bei der anschließenden Rekonstruktion des Signals destruktiv überlagern und nur mit kleinen Korrekturen beitragen. Für eine perfekte Rekonstruktion des Signals müssen so viele Basisfunktionen benutzt werden, dass die entsprechende von Neumann-Intensität in den Randbereichen des Phasenraumes schon gegen Null konvergiert ist. Für die verwendete von Neumann-Basis ist diese Konvergenz, wie von Davis und Heller diskutiert, sehr langsam [230], weswegen diese Autoren für ihre Berechnungen stets einen übervollständigen Satz an Basisfunktionen wählten.

Betrachtet man die komplexe Husimi-Darstellung, die vor der Anwendung der inversen Überlapp-Matrix entsteht (vergleiche Abbildung 7.5 und Gleichung (7.17)), so sieht man, dass in dieser die Intensität sehr lokal konzentriert ist. Innerhalb weniger Pixel sinkt der Überlapp zwischen Signal und betrachteter Basisfunktion auf 10^{-5} ab, und für mehr als drei Viertel der von Neumann-Ebene liegt er sogar bei Werten kleiner als 10^{-20} , weshalb Beiträge vom Rand des gewählten Phasenraumausschnittes nur dann eine Rolle spielen wenn das zu transformierende Signal unmittelbar dort platziert ist. Dies impliziert, dass nicht die Berechnung des Überlapps des Signals mit den Basisfunktionen die Quelle des Problems sein kann, sondern die Ursache vielmehr in der Überlapp-Matrix und ihrer Inversen zu suchen ist. Durch ihre Verwendung bei der Berechnung der von Neumann-Darstellung gehen offensichtlich Informationen, die in der komplexen Husimi-Darstellung noch enthalten sind, verloren.

Insgesamt wurden drei unterschiedliche Ansätze erarbeitet um dieses Problem zu lösen. Diese besitzen in Hinblick auf die geplante Anwendung der von Neumann-Darstellung in der Quantenkontrolle verschiedene Vor- und Nachteile, die im Folgenden näher untersucht werden sollen.

7.2.1 Vergrößerung der von Neumann-Ebene

Die naheliegendste Lösung für das oben beschriebene Problem ist es, einfach mehr Basisfunktionen zu nutzen, also einen größeren Ausschnitt des Frequenz-Zeit-Phasenraumes zu verwenden. Eine mögliche Vorgehensweise ist in 7.6 skizziert: Ausgehend von einem in N Punkten gesampelten Signal wird zunächst die dazugehörige, ebenfalls $N = \sqrt{N} \cdot \sqrt{N}$ Phasenraumpunkte umfassende, komplexe Husimi-Darstellung berechnet. Wie schon erklärt, enthält diese die gesamte Information des Signals, da ihre Intensität in Randbereichen des betrachteten Phasenraumvolumens verschwindend gering ist. Da für den nächsten Schritt, der Berechnung der korrekten von Neumann-Darstellung aus der Husimi-Darstellung, mehr als N Basisfunktionen benötigt werden, wird diese anschließend in alle Richtungen mit Nullen aufgefüllt. Mit dieser „erweiterten“ komplexen Husimi-Darstellung wird dann die von Neumann-Darstellung berechnet. Das rekonstruierte Signal erhält man wie gewohnt mit Gleichung (7.16) durch Summation über die erweiterte von Neumann-Ebene, wobei allerdings nur der Frequenzbereich Ω physikalisch sinnvoll ist und deshalb aus dem erhaltenen Signal ausgeschnitten wird. Rechnet man mit den Ba-

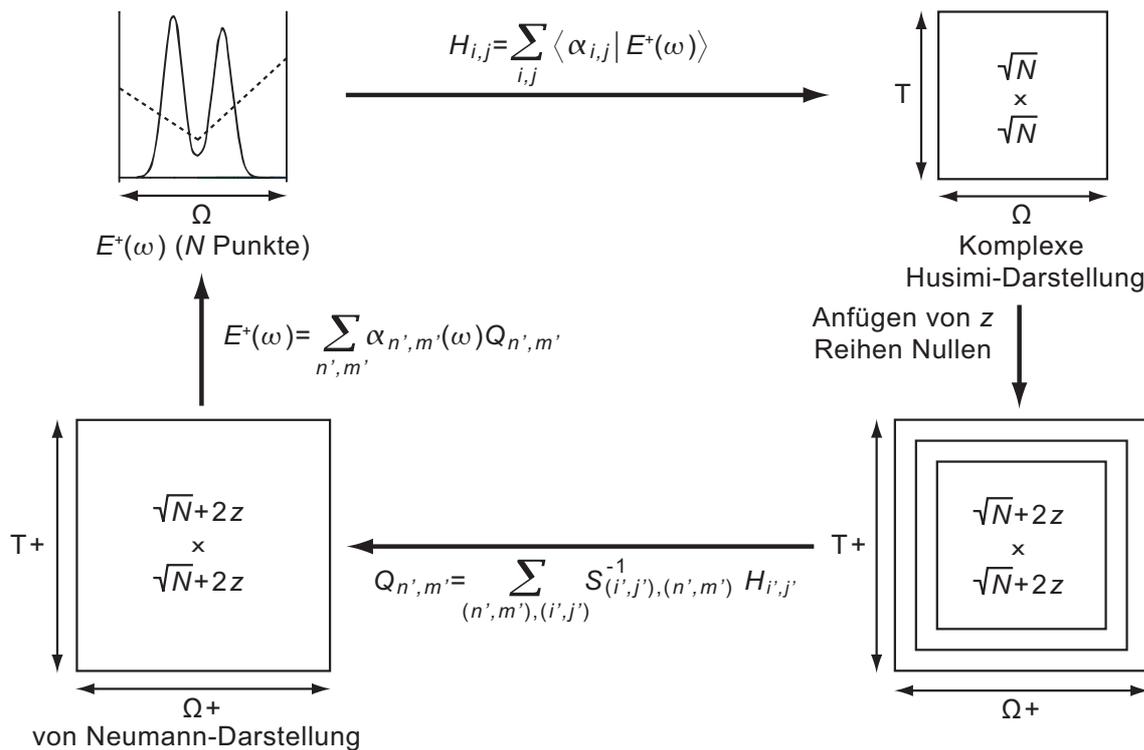


Abbildung 7.6: Vergrößerung der von Neumann-Ebene: Aus einem in N Punkten bekannten Signal wird durch Projektion auf die Basisfunktionen zunächst die komplexe Husimi-Darstellung in N Phasenraumpunkten berechnet. Anschließend wird diese durch Anfügen von Nullen in alle Richtungen erweitert. In diesen nun vergrößerten Phasenraumausschnitt wird die von Neumann-Darstellung berechnet, die nun nicht mehr abgeschnitten wird.

sisfunktionen im Zeitraum, so wählt man analog dazu den Bereich von $-T/2$ bis $T/2$ aus. Das Ergebnis einer solchen Berechnung mit erweiterter von Neumann-Ebene ist in Abbildung 7.7 gezeigt. Bei dem gewählten Beispiel (rote Linie in Abbildung 7.7(c)) handelt es sich um den selben Laserpuls wie in Abbildung 7.5. Das Anfügen von fünf Reihen Basisfunktionen führt zu einer wesentlich verbesserten Signalrekonstruktion (blaue Linie in Abbildung 7.7(c)). Die noch vorhandenen Störungen sind so gering, dass sie in experimentellen Anwendungen vernachlässigt werden können. Da durch Vergrößern der von Neumann-Ebene stets die gleiche langsame Konvergenz ausgeglichen werden soll, ist die mit fünf zusätzlichen Reihen erzielte Verbesserung der Transformationsqualität weitestgehend unabhängig von der ursprünglichen Größe der von Neumann-Ebene. Durch Anfügen weiterer Reihen von Basisfunktionen kann das Ergebnis noch zusätzlich verbessert werden, wobei die erzielte Verbesserung pro angefügter Reihe immer geringer wird. Da die Größe der Überlapp-Matrix quadratisch mit der Anzahl der verwendeten Basisfunktionen ansteigt und das Hinzufügen von z Reihen $4(z\sqrt{N} + z^2)$ zusätzliche Basisfunktionen bedeutet, nimmt der Rechenaufwand für große z unverhältnismäßig zu. Deshalb wird man sich meist mit fünf zusätzlichen Reihen an Basisfunktionen begnügen.

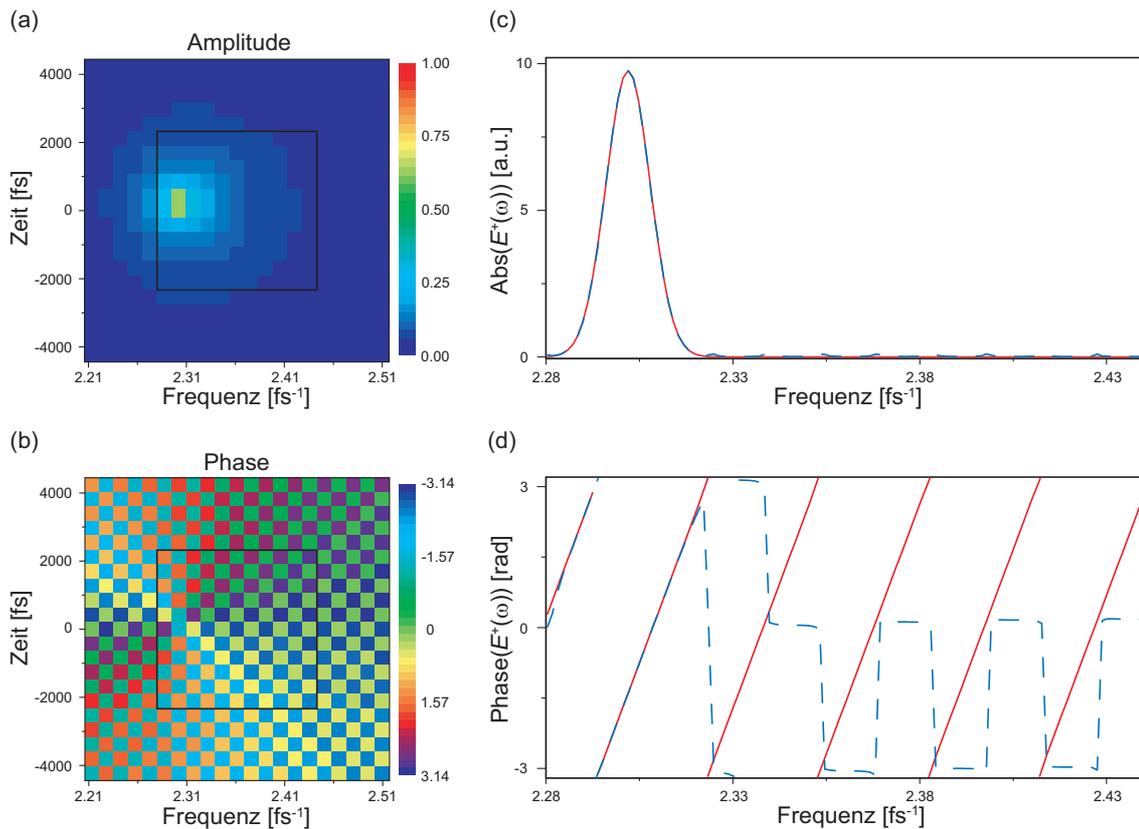


Abbildung 7.7: Beispiel zur Signalrekonstruktion mit vergrößerter von Neumann-Ebene. Bei dem transformierten Signal handelt es sich um denselben Laserpuls wie in Abbildung 7.5. Die Vorgehensweise bei der Erweiterung der von Neumann-Ebene ist schematisch in Abbildung 7.6 beschrieben. Der schwarze Kasten in (a) und (b) deutet den ursprünglichen Bereich des Phasenraums an. Man erkennt deutlich, dass auch in dem um fünf Reihen an Basisfunktionen erweiterten Phasenraum noch beträchtlich viel Intensität vorhanden ist. Das so erhaltene rekonstruierte Signal (blaue gestrichelte Linie in (c) und (d)), ist bis auf vernachlässigbare Abweichungen, nicht von dem Originalsignal (rote Linie in (c) und (d)) zu unterscheiden.

Wie man sehen kann, führt die Vergrößerung der von Neumann-Ebene zum Erfolg, allerdings zu dem Preis, dass deutlich mehr als N Basisfunktionen zur Rekonstruktion eines an N Punkten gegebenen Signals benötigt werden. Die vorliegende Abbildung zwischen Signal und von Neumann-Ebene ist demzufolge nicht bijektiv, was in Hinblick auf eine Anwendung der von Neumann-Darstellung in Quantenkontroll-Experimenten sehr ungünstig ist. Definiert man Signale in der erweiterten von Neumann-Ebene, so kann es nun durchaus vorkommen, dass physikalisch nicht sinnvolle Impulsformen entstehen.

Ein möglicher Ausweg ist es, Signale fortan in der komplexen Husimi-Darstellung zu definieren und die erweiterte von Neumann-Darstellung nur als Zwischenschritt bei der Berechnung der entsprechenden elektrischen Felder zu betrachten. Da die

komplexe Husimi-Darstellung mit nur N Punkten auskommt, läge dann auch eine bijektive Abbildung zwischen den verschiedenen Pixeln des Impulsformers und der Phasenraumdarstellung des geformten Laserpulses vor. Weiterhin ist es vorteilhaft, dass in jedem Fall nur wenige Pixel definiert werden müssten, um einzelne Impulse zu definieren. Dies ist bei der von Neumann-Darstellung nur für die den Basisfunktionen entsprechenden Laserpulse der Fall, da in allen anderen Fällen das schon diskutierte Verschmieren der von Neumann-Intensität auftritt.

7.2.2 Einführung zyklischer Randbedingungen

Bislang wurde der betrachtete Ausschnitt des Phasenraumes bei der Berechnung der Überlapp-Matrix nicht weiter berücksichtigt. Vielmehr wurden sämtliche Integrale über den gesamten Spektralbereich berechnet (siehe Anhang A). Dies ist insbesondere für Basisfunktionen vom Rand der von Neumann-Ebene problematisch, da Überlapp aus physikalisch eigentlich nicht relevanten Bereichen mit in die Berechnung einfließt. Für zwei zeitlich benachbarte Basisfunktionen am Frequenzrand der von Neumann-Ebene ist dies in Abbildung 7.8(a) demonstriert. Die grüne Linie entspricht dem Realteil der Basisfunktion bei $t = 0$ fs, die blaue Linie dem der Basisfunktion bei $t = 423$ fs. Auch bei Frequenzwerten kleiner als $2,28 \text{ fs}^{-1}$, also jenseits des Randes der von Neumann-Ebene überlappen die beiden Funktionen und liefern so einen unphysikalischen Beitrag zur Überlapp-Matrix. Verwendet man statt

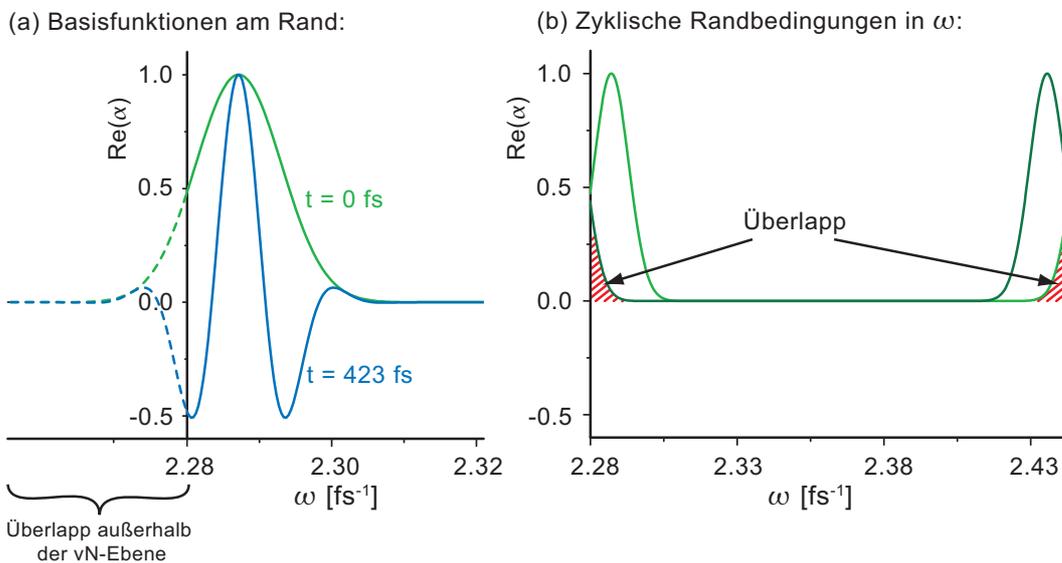


Abbildung 7.8: Zyklische Randbedingungen in der von Neumann-Ebene. (a) Überlapp zweier zeitlich benachbarter Basisfunktionen am Frequenzrand der von Neumann-Ebene. In der analytischen Formel für die Überlapp-Matrix wird der unphysikalische Beitrag außerhalb der von Neumann-Ebene berücksichtigt. (b) Einführung zyklischer Randbedingungen in der Frequenz. Beim Verlassen der von Neumann-Ebene laufen die zyklischen Basisfunktionen am gegenüber liegenden Rand wieder in die Ebene.

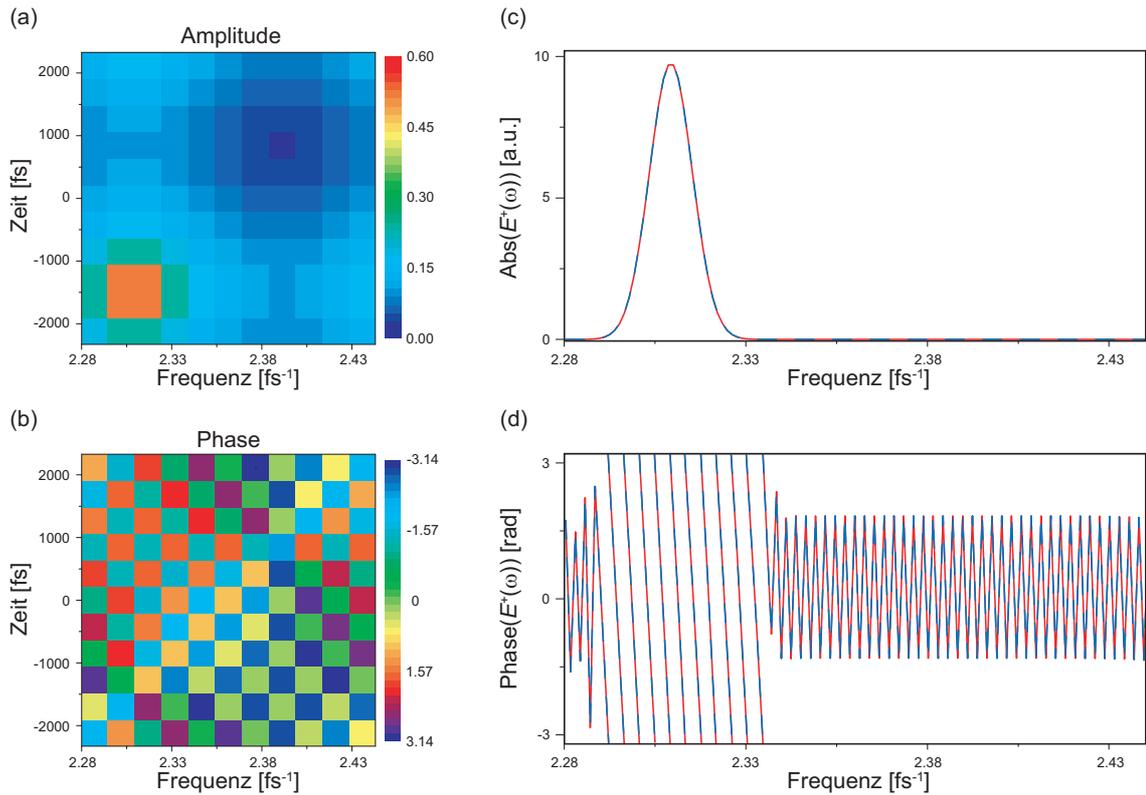


Abbildung 7.9: Signalrekonstruktion mit zyklischen Randbedingungen. Das Ausgangssignal (rote Linie in (c) und (d)) ist ein Gaußimpuls mit minimaler Halbwertsbreite, der sich mittig zwischen vier Basisfunktionen befindet. (a) Amplitude der von Neumann-Darstellung. Deutlich zu erkennen ist, dass die Amplitude gleichmäßig auf vier von Neumann-Pixel verteilt ist. Zudem sieht man den Effekt der zyklischen Randbedingungen durch die an der gegenüberliegenden Phasenraumecke auftretende Intensität. (b) Von Neumann-Phase. In (c) und (d) sind die spektrale Amplitude und Intensität des Signals dargestellt. Es besteht eine perfekte Übereinstimmung zwischen dem Ausgangssignal (rote Linie) und dem rekonstruierten elektrischen Feld (blaue gestrichelte Linie).

Gleichung (7.15) den folgenden Ausdruck,

$$S_{(n,m),(i,j)} = \int_{\omega_{min}}^{\omega_{max}} \alpha_{\omega_n t_m}^*(\omega) \alpha_{\omega_i t_j}(\omega) d\omega, \quad (7.18)$$

zur Berechnung der Überlapp-Matrix, so werden diese störenden Beiträge vermieden. Allerdings kann nun keine analytische Formel zur Berechnung der Überlapp-Matrixelemente mehr angegeben werden. Für eine numerische Berechnung werden die Basisfunktionen einfach dem Signalsampling entsprechend berechnet und das Integral in Gleichung (7.18) wird durch eine Summe über alle Frequenzpunkte ersetzt. Die so erhaltene Überlapp-Matrix ist nun nicht mehr reellwertig, jedoch immer noch hermitesch und somit invertierbar.

Diese numerische Berechnung hat noch eine weitere Konsequenz: Auf Grund des Samplings des Signals sind keine spektralen Phasen mehr darstellbar, die Zeiten außerhalb von T entsprechen würden. Deshalb überlappen nun Basisfunktionen, die an gegenüberliegenden Zeiträndern der von Neumann-Ebene liegen. Dies führt automatisch zyklische Randbedingungen in Zeitrichtung ein. Der zyklische Überlapp sorgt dafür, dass alle Beiträge, die bei einer Vergrößerung der von Neumann-Ebene außerhalb des Zeitbereiches T liegen würden, durch die modifizierte inverse Überlapp-Matrix auf die ursprüngliche von Neumann-Ebene abgebildet werden.

Die Einführung zyklischer Randbedingungen in Frequenzrichtung erfolgt hingegen nicht automatisch, sondern muss über spezielle, zyklischer Basisfunktionen gewährleistet werden. Diese Basisfunktionen sind identisch zu den in Gleichung (7.5) definierten, nur, dass sie nicht außerhalb des Frequenzbereiches Ω der von Neumann-Ebene definiert sind und beim Verlassen der Ebene am gegenüberliegenden Rand wieder in diese hinein laufen (siehe Abbildung 7.8).

Mit dieser nun in der Frequenz und in der Zeit periodischen Überlapp-Matrix ist der Neumann-Basis-Satz auch auf dem eingeschränkten Bereich des Phasenraumes vollständig. Alle Beiträge, die vorher die von Neumann-Ebene verlassen hätten, werden durch die inverse Überlapp-Matrix zurück in die von Neumann-Ebene abgebildet. Transformationen, die mit dieser Basis berechnet werden, liefern perfekte Ergebnisse. Zur Illustration ist in Abbildung 7.9 der für die von Neumann-Transformation schwierigste Fall gezeigt: Das Ausgangssignal ist ein Gaußimpuls der Breite einer Basisfunktion der sich im Phasenraum mittig zwischen vier Basisfunktionen befindet. Die von Neumann-Darstellung dieses Impulses ist über die komplette von Neumann-Ebene (siehe Abbildung 7.9(a)) ausgeschmiert. Deutlich erkennt man den Effekt der zyklischen Randbedingungen, der sich auch an der dem Signal gegenüberliegenden Ecke der von Neumann-Ebene bemerkbar macht. Das aus dieser von Neumann-Darstellung rekonstruierte Signal (blaue Linie in Abbildung 7.9(c) und (d)) stimmt perfekt mit dem Ausgangssignal (rote Linie in Abbildung 7.9(c) und (d)) überein.

Die Einführung zyklischer Randbedingungen macht die von Neumann-Transformation zu einer bijektiven Abbildung zwischen Frequenzraum und Zeit-Frequenz-Phasenraum. Dadurch ist es möglich, alle mit dem vorhandenen Impulsformer realisierbaren Laserpulse in der von Neumann-Darstellung zu definieren und anschließend experimentell umzusetzen. Umgekehrt entspricht jeder in der von Neumann-Darstellung definierte Laserpuls einem experimentell realisierbaren. Dies erlaubt es, Optimierungen in der von Neumann-Ebene durchzuführen und dabei von der intuitiven Interpretierbarkeit dieser Darstellung zu profitieren (siehe Abschnitt 7.5). Allerdings empfiehlt es sich auch hier aus den im vorangegangenen Abschnitt diskutierten Gründen die komplexe Husimi-Darstellung zur Definition der Impulse zu nutzen und die von Neumann-Ebene nur als Zwischenschritt bei der Berechnung der entsprechenden Darstellung im Frequenzraum zu verwenden.

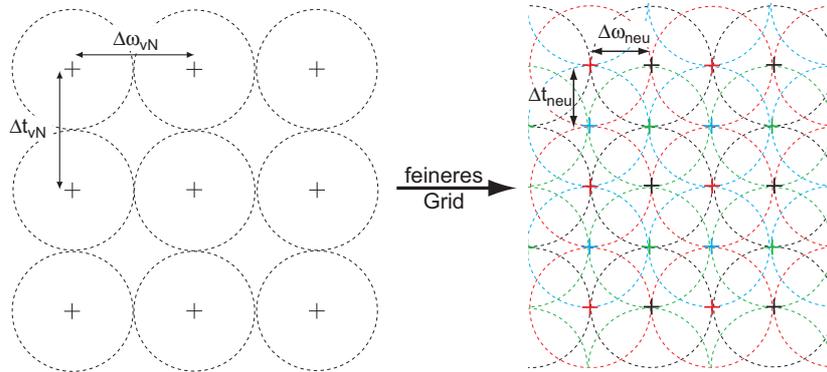


Abbildung 7.10: Verwendung eines übervollständigen Basissatzes. Auf der linken Seite ist das von Neumann-Gitter mit einem Phasenraumvolumen von 2π pro Basisfunktion dargestellt. Die gestrichelten schwarzen Kreise deuten die Halbwertsbreiten der Basisfunktionen an. Durch sukzessives Hinzufügen weiterer Basisfunktionen (farbige Kreise) derselben Halbwertsbreite wird der Abstand der Basisfunktionen von $\Delta\omega_{vN}$ und Δt_{vN} auf $\Delta\omega_{neu}$ und Δt_{neu} reduziert. Ist etwa das vierfache der Ausgangsdichte erreicht, lässt sich die komplexe Husimi-Darstellung in ausgezeichneter Qualität rekonstruieren.

7.2.3 Verwendung eines übervollständigen Basissatzes

Für eine leichtere Interpretation der Phasenraumdarstellung ist oft eine höhere Auflösung als die der von Neumann-Darstellung wünschenswert. Die Verwendung einer höheren Dichte an Basisfunktionen würde zudem die Konvergenz der Projektion beschleunigen und das in den vorherigen Abschnitten 7.2.1 und 7.2.2 beobachtete Ausschmieren der Phasenraumintensität verhindern.

Da gewährleistet werden soll, dass nur physikalisch sinnvolle Laserpulse definiert werden können, sollen die Basisfunktionen weiterhin die in Abschnitt 7.1 definierte Ausdehnung in Frequenz- und Zeitrichtung, σ_ω und σ_t , haben. Allerdings werden diese, wie in Abbildung 7.10 gezeigt, enger gepackt. Da das Phasenraumvolumen pro Basisfunktion nun kleiner als 2π ist, liegt eine übervollständige Basis vor, und die Überlapp-Matrix kann nicht invertiert werden. Aus diesem Grund wird im Folgenden die komplexwertige Husimi-Darstellung

$$H_{\omega_n t_m} = \langle \alpha_{\omega_n t_m} | E^+ \rangle \quad (7.19)$$

betrachtet, die die inverse Überlapp-Matrix nicht benötigt. Im Grenzfall einer kontinuierlichen Basis lässt sich aus ihr das elektrische Feld mathematisch exakt rekonstruieren:

$$E^+(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} H_{\omega_n t_m} \alpha_{\omega_n t_m}(\omega) d\omega_n dt_m. \quad (7.20)$$

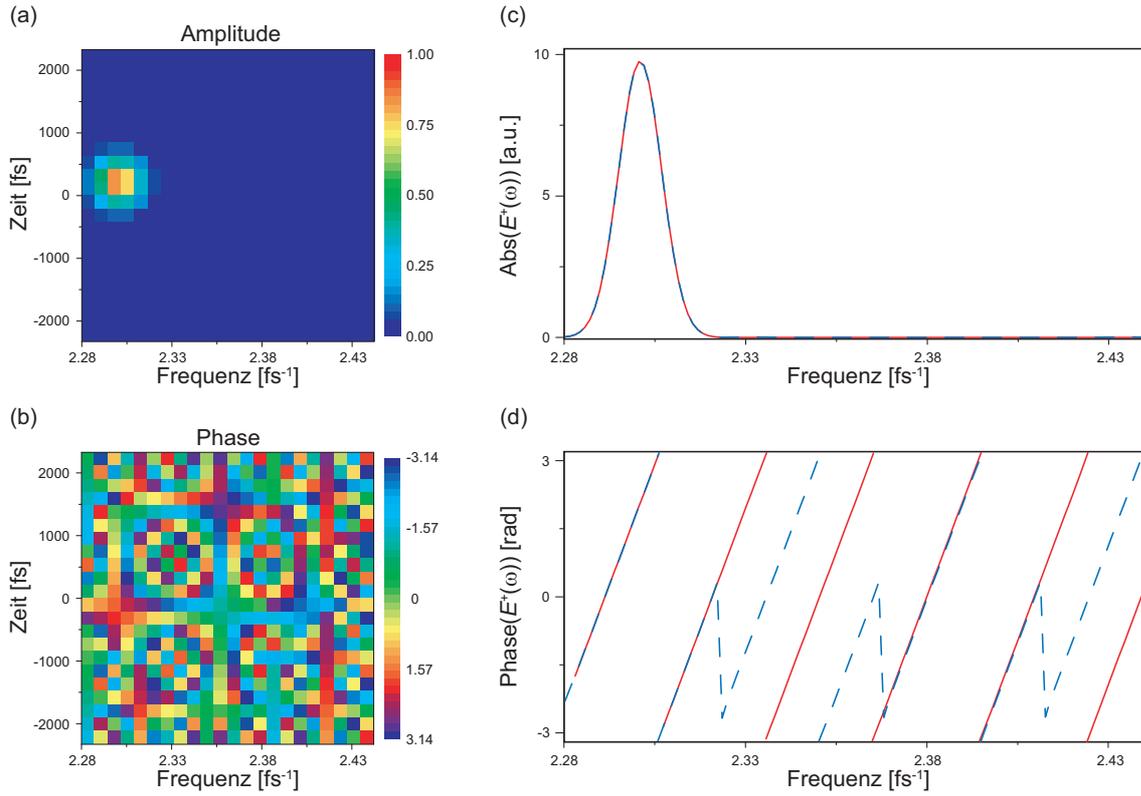


Abbildung 7.11: Komplexe Husimi-Darstellung mit hoher Basisfunktionsdichte. (a) Amplitude und (b) Phase der komplexen Husimi-Darstellung des bereits in Abschnitt 7.2.1 verwendeten elektrischen Feldes. Es wurde im Vergleich zur von Neumann-Darstellung die vierfache Basisfunktionsdichte verwendet. Das elektrische Feld ist in (c) und (d) in Intensität und Phase gezeigt. Die Übereinstimmung zwischen dem Ausgangssignal (rote Linie) und dem rekonstruierten Signal (blaue gestrichelte Linie) ist, abgesehen von Bereichen geringer Intensität, exzellent.

Beträgt der Abstand der Basisfunktionen in der Frequenz $\Delta\omega$ und in der Zeit Δt , so kann Gleichung (7.20) durch

$$E^+(\omega) = \frac{\Delta\omega\Delta t}{2\pi} \sum_{n,m} H_{\omega_n t_m} \alpha_{\omega_n t_m}(\omega) \quad (7.21)$$

angenähert werden. Diese Näherung ist für grobe Basisfunktionsraster, wie das der von Neumann-Darstellung, unzulänglich und liefert fehlerhaft rekonstruierte elektrische Felder. Sobald die Dichte der Basisfunktionen jedoch hinreichend groß wird, in unserem Fall bei etwa dem vierfachen Wert der von Neumann-Basis, genügt die erreichte Rekonstruktionsgenauigkeit allen praktischen Anforderungen. Dies ist in Abbildung 7.11 an Hand des Beispiels aus Abschnitt 7.2.1 gezeigt.

Möchte man diese komplexe Husimi-Darstellung für Experimente nutzen, so muss man beachten, dass man nun keine bijektive, sondern nur noch eine injektive Abbildung zwischen den Pixeln des Impulsformers und den Punkten des Phasenraumes

vorliegen hat. Es existieren mehrere, komplexe Husimi-Darstellungen, die ein und derselben Impulsform entsprechen. Dies macht die Darstellung für die Verwendung in freien Optimierungen unattraktiv. Jedoch ist es weiterhin nicht möglich, in der Phasenraumdarstellung unphysikalische Laserpulse zu definieren. Deshalb ist sie zur Erstellung von Fitness-Landschaften gut geeignet. Für Mehrfachimpulse, bei denen einzelne Impulsmerkmale in Frequenz und Zeit verschoben werden sollen, reicht es sogar aus, einen einzelnen Pixel je Teilimpuls zu definieren, da jede einzelne Basisfunktion einem bandbreitebegrenzten Laserpuls entspricht.

Die Besonderheit der komplexen Husimi-Darstellung mit erhöhter Basisfunktionsdichte ist, dass zwar die Auflösung formell beliebig erhöht werden kann, in Wirklichkeit aber durch die physikalischen Randbedingungen beschränkt ist. Zwar ist es möglich beliebige komplexe Husimi-Darstellungen zu definieren, jedoch werden diese durch Transformation in die Frequenz-Darstellung und anschließender Rücktransformation in der Phasenraum auf ihre „wahre“ komplexe Husimi-Darstellung abgebildet.

Im Fazit muss über die drei vorangegangenen Ansätze die von-Neumann-Darstellung auf endliche, diskret gesampelte elektrische Felder zu übertragen, gesagt werden, dass das beobachtete Ausschmieren der von Neumann-Intensität nicht verhindert werden kann. Es ist vielmehr bedingt durch die Verwendung eines genau vollständigen Satzes an Basisfunktionen. Dies wurde im letzten Abschnitt deutlich, der die Anwendbarkeit übervollständiger Basissätze untersuchte. Abhängig von der beabsichtigten experimentellen Anwendung muss man also abwägen, ob man unbedingt eine injektive Abbildung zwischen Impulsformer und Phasenraum benötigt, oder eher auf eine einfache Interpretierbarkeit Wert legt. Im ersteren Fall ist die von Neumann-Darstellung mit zyklischen Randbedingungen zu wählen. Kann man auf die Injektivität verzichten, ist die übervollständige komplexe Husimi-Darstellung zu bevorzugen.

7.3 Interpretation

Nachdem die Berechnung der von Neumann-Darstellung ultrakurzer Laserpulse im Detail erklärt wurde, sollen in diesem Abschnitt einige ihrer Eigenschaften diskutiert werden.

Die Wichtigste und Offensichtlichste ist die Additivität: Die von Neumann-Darstellung der Summe zweier elektrischer Felder ist gleich der Summe der von Neumann-Darstellungen der einzelnen Felder. Die Ursache hierfür ist, dass die inverse Überlapp-Matrix und die Basisfunktionen nur vom gewählten Ausschnitt des Phasenraumes abhängen, jedoch nicht vom repräsentierten Feld. Unter Ausnutzung

der Additivität elektrischer Felder ergibt sich deshalb:

$$\begin{aligned}
Q_1 + Q_2 &= \sum_{i,j} S_{(n,m)(i,j)}^{-1} \langle \alpha_{i,j} | E_1^+ \rangle + \sum_{i,j} S_{(n,m)(i,j)}^{-1} \langle \alpha_{i,j} | E_2^+ \rangle \\
&= \sum_{i,j} S_{(n,m)(i,j)}^{-1} (\langle \alpha_{i,j} | E_1^+ \rangle + \langle \alpha_{i,j} | E_2^+ \rangle) \\
&= \sum_{i,j} S_{(n,m)(i,j)}^{-1} \langle \alpha_{i,j} | E_1^+ + E_2^+ \rangle.
\end{aligned} \tag{7.22}$$

Diese Eigenschaft der von Neumann-Darstellung ist deshalb so nützlich, weil sie es erlaubt, Mehrfachimpulse aus den von Neumann-Darstellungen der einzelnen Teilimpulse zu gewinnen. Dies kann bei der Aufnahme von Fitness-Landschaften oder auch bei der Entwicklung intelligenter Optimierungsalgorithmen verwendet werden. Weder die Wigner- noch die Husimi-Darstellung (siehe Abschnitt 3.2) haben diese praktische Eigenschaft, da beide nicht linear im elektrischen Feld sind.

Wie man in den Beispielen der vorangegangenen Abschnitte sehen konnte, lassen sich die Koeffizienten der von Neumann-Darstellung, wie jede komplexe Zahl, auf eindeutige Weise als Funktion einer Amplitude und einer Phase schreiben:

$$Q_{\omega_n t_m} = |Q_{\omega_n t_m}| \exp(i\Phi_{\omega_n t_m}). \tag{7.23}$$

Doch welche Bedeutungen haben diese beiden Größen? An erster Stelle soll eine Interpretation der von Neumann-Phase gegeben werden. Dazu wird zunächst das elektrische Feld in der Frequenzdarstellung betrachtet. Wie in Kapitel 3 gezeigt wurde, kann auch dieses als Funktion von einer spektralen Amplitude und Phase geschrieben werden:

$$E^+(\omega) = |E^+(\omega)| \exp[-i\Phi_{E^+}(\omega)] \tag{7.24}$$

Setzt man nun in die Gleichung der Rücktransformation von der von Neumann-Darstellung (7.16) zum elektrischen Feld $E^+(\omega)$ die Definition der Basisfunktionen (7.5) ein, so erhält man:

$$E^+(\omega) = \left(\frac{2\alpha}{\pi}\right)^{1/4} \sum_{n,m} |Q_{\omega_n t_m}| \exp[-\alpha(\omega - \omega_n)^2] \exp\{-i[t_m(\omega - \omega_n) - \Phi_{\omega_n t_m}]\}. \tag{7.25}$$

Der Vergleich dieser Gleichung mit (7.24) zeigt, dass eine Interpretation des Verhältnisses der beiden Phasen zueinander im Allgemeinen schwierig ist, da alle von Neumann-Phasen, gewichtet mit der jeweiligen Intensität, zur Gesamtphase des elektrischen Feldes bei einer Frequenz ω beitragen. Betrachtet man jedoch den Sonderfall, dass nur wenige in der Frequenz deutlich getrennte Basisfunktionen überhaupt zum Signal beitragen, bekommt die von Neumann-Phase eine einfache Bedeutung. Zur Illustration ist in Abbildung 7.12 ein Doppelimpuls, bestehend aus zwei von Neumann-Basisfunktionen, gezeigt. Die einzelnen Teilimpulse sind deutlich getrennt, die soeben gemachten Annahmen also erfüllt. Es seien $Q_{\omega_1 t_1}$ und $Q_{\omega_2 t_2}$ die

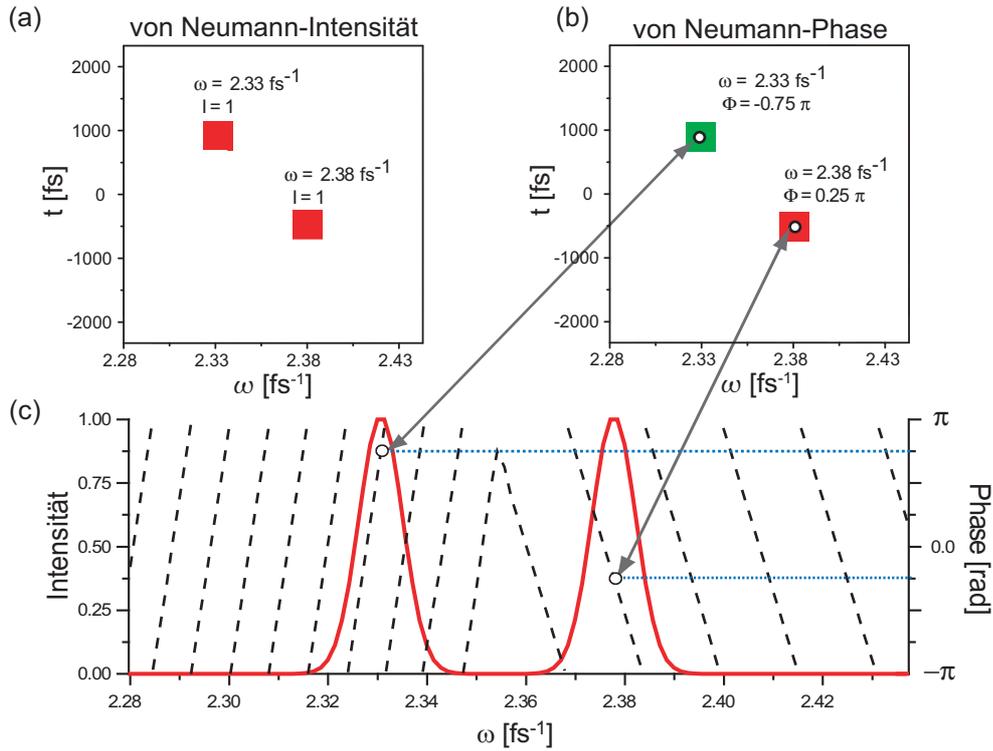


Abbildung 7.12: Bedeutung der von Neumann-Phase. Gezeigt sind Intensität (a) und Phase (b) der von Neumann-Darstellung eines Zeit-Frequenz-Doppelimpulses mit deutlich separierten Teilimpulsen. Die von Neumann-Intensität beider Teilimpulse ist gleich, die von Neumann-Phase hingegen unterscheidet sich. Sie beträgt $-0,75\pi$ rad bei $\omega = 2,33 \text{ fs}^{-1}$ und $0,25\pi$ rad bei $\omega = 2,38 \text{ fs}^{-1}$. Im unteren Bildteil (c) ist das entsprechende elektrische Feld im Frequenzraum in Intensität (rote Linie) und Phase (schwarze gestrichelte Linie) zu sehen. Die grauen Pfeile zeigen, dass bei den entsprechenden Frequenzen die spektrale Phase, bis auf einen Faktor -1 , mit der von Neumann-Phase übereinstimmt.

den zwei Basisfunktionen entsprechenden von Neumann-Koeffizienten. Nur sie haben eine nicht verschwindende Intensität. So ergibt sich, unter Beachtung von $Q_{\omega_i t_i} = 0$ für $i \notin \{1, 2\}$ und Gleichung (7.25)

$$E^+(\omega) = A_1(\omega) \exp\{-i[t_1(\omega - \omega_1) - \Phi_{\omega_1 t_1}]\} + A_2(\omega) \exp\{-i[t_2(\omega - \omega_2) - \Phi_{\omega_2 t_2}]\}, \quad (7.26)$$

mit den Amplituden

$$A_i(\omega) = \left(\frac{2\alpha}{\pi}\right)^{1/4} |Q_{\omega_i t_i}| \exp[-\alpha(\omega - \omega_i)^2]. \quad (7.27)$$

Weiterhin sind, da die Teilimpulse als in der Frequenz deutlich separiert angenommen wurden, $A_1(\omega_2) \approx 0$ und $A_2(\omega_1) \approx 0$. Damit erhält man mit Gleichung (7.27) sofort: $\Phi_{E^+}(\omega_1) = -\Phi_{\omega_1 t_1}$ und $\Phi_{E^+}(\omega_2) = -\Phi_{\omega_2 t_2}$. Für gut getrennte Teilimpulse entspricht die von Neumann-Phase also, bis auf einen Faktor -1 , der spektralen Phase des elektrischen Feldes. Insbesondere ist die relative von Neumann-Phase

identisch zur relativen spektralen Phase der Teilimpulse. Für alle anderen Frequenzen ω , für die die Amplitude $A_1(\omega) \gg A_2(\omega)$ ist, erhält man näherungsweise die lineare Phase $\Phi_{E^+}(\omega) = [t_1(\omega - \omega_1) - \Phi_{\omega_1 t_1}]$. Umgekehrt gilt für alle Frequenzen mit $A_1(\omega) \ll A_2(\omega)$ dann $\Phi_{E^+}(\omega) = [t_2(\omega - \omega_2) - \Phi_{\omega_2 t_2}]$.

Für zeitlich separierte Teilimpulse kann unter Verwendung der Definition der zeitlichen Basisfunktionen (7.6) ein ähnlicher Ausdruck für die zeitliche Phase der Teilimpulse gefunden werden:

$$\Phi_{E^+}(t_i) = -t_i \omega_i + \Phi_{\omega_i t_i} \quad (i = 1, 2). \quad (7.28)$$

Unter Berücksichtigung des Phasenoffsets $-\omega_i t_i$, der von einer geringfügig abweichenden Definition der zeitlichen Basisfunktionen herrührt, kann somit auch die relative zeitliche Phase separierter Laserpulse aus ihrer von Neumann-Phase gewonnen werden.

Sind die Bedingungen zur direkten Interpretation der von Neumann-Phase erfüllt, das heißt, liegen deutlich getrennte Teilimpulse vor, so können aus den von Neumann-Intensitäten $|Q_{\omega_i t_i}|^2$ direkt die spektrale

$$I(\omega = \omega_i) = 2\varepsilon_0 c_0 n \left(\frac{2\alpha}{\pi} \right)^{1/2} |Q_{\omega_i t_i}|^2 \quad (7.29)$$

und die zeitliche

$$I(t = t_i) = 2\varepsilon_0 c_0 n \left(\frac{1}{2\alpha\pi} \right)^{1/2} |Q_{\omega_i t_i}|^2 \quad (7.30)$$

Intensität des elektrischen Feldes bestimmt werden. Liegen keine ausreichend getrennten Teilimpulse vor, so ist diese Interpretation auf Grund von Interferenzeffekten nicht zulässig.

Im Gegensatz zur Husimi-Darstellung kann die von-Neumann-Darstellung nicht als Wahrscheinlichkeitsverteilung für die Detektion von Photonen gedeutet werden. Der Grund hierfür ist die Überlapp-Matrix, die auch das schon ausgiebig diskutierte Verschmieren der von Neumann-Intensität bestimmter Laserpulse verursacht. Möchte man trotzdem eine solche Wahrscheinlichkeitsverteilung erhalten, so bietet sich die für die zur Evaluation der von Neumann-Darstellung ohnehin schon berechnete komplexe Husimi-Darstellung an. Nach Bilden des Betragsquadrates erhält man aus ihr die gewöhnliche Husimi-Darstellung, die wie in der Literatur beschrieben, interpretiert werden kann.

7.4 Vergleich mit anderen Darstellungen elektrischer Felder

In dieser Arbeit wurden verschiedene Arten elektrische Felder zu beschreiben vorgestellt und in den jeweiligen Abschnitten hinsichtlich ihrer Vor- und Nachteile analysiert. Um den Überblick zu erleichtern, soll an dieser Stelle eine kurze, gegenüberstellende Zusammenfassung in Text und in Tabelle 7.1 gegeben werden.

Es wurden insgesamt sechs Möglichkeiten das elektrische Feld eines ultrakurzen Laserpulses zu beschreiben vorgestellt. Die physikalisch naheliegendste war die Beschreibung des reellen elektrischen Feldes als Funktion der Zeit. Hier wird jede einzelne Oszillation der Amplitude des Signals genau aufgelöst. Aus diesem Grund sind so auch beliebig komplizierte elektrische Felder darstellbar. Während der zeitliche Verlauf der Intensität direkt ersichtlich ist, steht für eine Interpretation der spektralen Eigenschaften nur die Momentanfrequenz zur Verfügung, eine zur Beschreibung ultrakurzer Laserpulse wenig aussagekräftige Größe. Ein weiterer Nachteil dieser Darstellung ist die hohe benötigte Auflösung. Insbesondere bei schnell oszillieren-

Tabelle 7.1: Vergleich verschiedener Darstellungen für ultrakurze Laserpulse: Berücksichtigt werden die reelle Darstellung des zeitlichen elektrischen Feldes, die Näherungen $E^+(\omega)$ und $E^+(t)$ im Rahmen der SVEA, die gebräuchlichsten Zeit-Frequenz-Phasenraumdarstellungen (Wigner und Husimi) und die von Neumann-Darstellung.

Darstellung	Spektrale Interpretation	Zeitliche Interpretation
reelles zeitliches Feld	Momentanfrequenz	direkt
$E^+(\omega)$	direkt	über Fourier
$E^+(t)$	über Fourier	direkt
Wigner	kompliziert wegen Interferenzen	kompliziert wegen Interferenzen
Husimi	direkt, keine Information über Phase	direkt, keine Information über Phase
komplexe Husimi	direkt	direkt
von Neumann	direkt, mit geringfügigen Einschränkungen	direkt, mit geringfügigen Einschränkungen
Darstellung	Datenpunkte	Umwandlung in $E^+(\omega)$ / $E^+(t)$
reelles zeitliches Feld	$\gg N$ wegen schneller Oszillationen	direkt
$E^+(\omega)$	N	direkt
$E^+(t)$	N	direkt
Wigner	$(2N)^2$ für graphische Darstellung	über Randbedingungen
Husimi	$\gg N$, idealerweise N^2 für graphische Darstellung	keine direkte Methode
komplexe Husimi	N für vollständige Darstellung, circa $(2\sqrt{N})^2$ für genaue Rekonstruktion	direkt bei ausreichend feinem Sampling
von Neumann	N	direkt

den Feldern wird die Anzahl der benötigten Stützstellen sehr schnell groß, da jede einzelne Oszillation aufgelöst werden muss.

Dieser Nachteil wird durch Benutzung der SVEA („slowly varying envelope approximation“) beseitigt. In dieser Näherung nutzt man aus, dass sich die Einhüllende des elektrischen Feldes während eines optischen Zyklus meist nur wenig ändert. Trifft dies zu, so kann man die schnellen Oszillationen des elektrischen Feldes von den Restlichen trennen, wobei die verbleibende komplexe Einhüllende $E^+(t)$ die Eigenschaften des elektrischen Feldes gut erfasst. Da nun die schnellen Oszillationen nicht mehr auftreten, sind deutlich weniger Datenpunkte notwendig, um ein solches Signal zu beschreiben. Diese Darstellung erlaubt eine direkte Interpretation der zeitlichen Intensität, die spektralen Informationen sind jedoch in der Phase verborgen und somit nur schwer zu erfassen. Durch Fouriertransformation dieses eindimensionalen Signals im Zeitraum erhält man $E^+(\omega)$, die ebenfalls komplexwertige, eindimensionale Entsprechung im Frequenzraum. Die Zugänglichkeit der Informationen ist hier genau vertauscht. Während man direkt auf die spektrale Intensität zugreifen kann, ist sämtliche zeitliche Information, wie die Verteilung der einzelnen Frequenzen in der Zeit, in der spektralen Phase verschlüsselt. Einen Ausweg bieten zweidimensionale Darstellungen im Zeit-Frequenz-Phasenraum, die einen simultanen Zugang zu zeitlichen und spektralen Eigenschaften des elektrischen Feldes ermöglichen.

Unter ihnen hat sich insbesondere auf dem Gebiet der Quantenoptik die Wigner-Darstellung durchgesetzt. Sie ist eine reellwertige Phasenraumverteilung, die in Oszillationen im Zeit-Frequenz-Phasenraum allerdings auch negative Werte annimmt. Dies schließt eine Interpretation als Wahrscheinlichkeitsverteilung aus. Sie enthält die vollständige Information über das elektrische Feld, welches sich auch direkt aus dieser Darstellung wiedergewinnen lässt. Zusätzlich erhält man die zeitliche oder auch die spektrale Intensität des dargestellten elektrischen Feldes durch Summieren über alle Frequenzen beziehungsweise über alle Zeiten in der Wigner-Darstellung.

Glättet man die Wigner-Darstellung mit einer dem Heisenbergschen Unschärfeprinzip entsprechenden Gaußfunktion, so verschwinden alle negativen Werte und man erhält die Husimi-Darstellung des Laserpulses. Diese nimmt ausschließlich positive, reelle Werte an und eignet sich somit für eine Wahrscheinlichkeitsinterpretation. Sie enthält, bis auf die relative Phase zwischen im Phasenraum deutlich getrennten Teilimpulsen, ebenso wie die Wigner-Darstellung, die vollständige Information über das dargestellte elektrische Feld. Allerdings gibt es keine direkte Methode zur Rekonstruktion dieses Feldes. Dies ist für die meisten Anwendungen, in denen das elektrische Feld nur visualisiert werden soll, kein Nachteil, für eine Anwendung in Experimenten zu Quanten-Kontrolle jedoch sehr problematisch.

Die Husimi-Darstellung kann auch auf direktem Wege aus dem elektrischen Feld gewonnen werden. Dazu wird dieses auf einen übervollständigen Satz an kohärenten Zuständen projiziert. Dabei entsteht zunächst eine komplexwertige Variante der Husimi-Darstellung, aus der durch Bilden des Betragsquadrates die eigentliche Husimi-Darstellung gewonnen wird. Die komplexwertige Variante selbst bietet im Vergleich zur Husimi-Darstellung einige Vorteile, zu denen zum Beispiel die Rekon-

struierbarkeit des dargestellten Signals gehört.

Die von Neumann-Darstellung ist eng verwandt mit der komplexen Husimi-Darstellung. Der große Unterschied besteht darin, dass nun ein genau vollständiger Satz an Basisfunktionen verwendet wird. So entsteht eine grobgerasterte, um den Überlapp der Basisfunktionen korrigierte, Variante der komplexen Husimi-Darstellung. Die von Neumann-Transformation bietet also eine bijektive Abbildung zwischen einem Signal im Frequenz- oder Zeit-Raum und seiner Phasenraumdarstellung. Sie enthält somit, im Gegensatz zu den anderen Phasenraumdarstellungen keine redundanten Informationen.

Im Gegensatz dazu benötigt die Wigner-Darstellung zur Auflösung der feinen Interferenzen ein mit doppelter Frequenz abgetastetes Signal. Das bedeutet konkret, dass wenn im Frequenzraum N Punkte zur Darstellung des Signals ausreichen, $2N$ Punkte benötigt werden um diese Information komplett in die Wigner-Darstellung zu übertragen. Möchte man in einer graphischen Darstellung Frequenz und Zeit gleich gewichten, so enthält diese dann $(2N)^2$ Punkte. Da eigentlich nur ein Signal mit N Punkten dargestellt wird, sind somit viele redundante Informationen enthalten. Die Husimi-Darstellung kommt für eine graphische Darstellung auch mit weniger Punkten aus. Hier hängt der Anteil redundanter Informationen von der gewählten Auflösung ab. Bei einer Auflösung von N^2 Punkten sind zum Beispiel alle Informationen über das elektrische Feld schon in der Diagonalen enthalten. Bei der Berechnung der von Neumann-Darstellung hat man gesehen, dass sogar eine komplexwertige Husimi-Darstellung mit nur N Punkten schon die komplette Information enthält. Allerdings ist zur Rekonstruktion des elektrischen Feldes ein Umweg über dessen von Neumann-Darstellung nötig. Möchte man auf die Anwendung der inversen Überlapp-Matrix verzichten, so hat sich gezeigt, dass eine Samplingzahl von ungefähr $(2\sqrt{N})^2$ eine gute Genauigkeit liefert.

Bei allen Vorteilen, die die von Neumann-Darstellung bezüglich der Rekonstruierbarkeit und der Anzahl der benötigten Stützstellen bietet, so darf an dieser Stelle nicht unerwähnt bleiben, dass eine direkte Interpretation ihrer komplexwertigen Koeffizienten nur unter bestimmten Umständen möglich ist. Oftmals empfiehlt es sich, die mit dem vollständigen Satz an Basisfunktionen berechnete komplexwertige Husimi-Darstellung zur Interpretation heranzuziehen und die von Neumann-Darstellung nur als Zwischenschritt zur Signalrekonstruktion zu benutzen.

7.5 Anwendung in Quantenkontroll-Experimenten

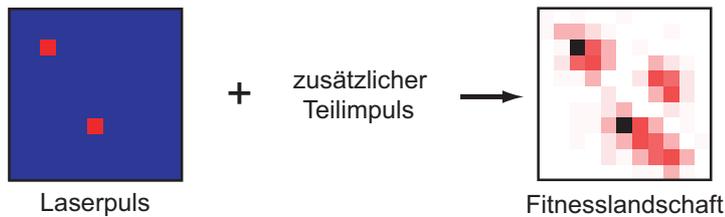
Das zentrale Problem der Quantenkontrolle ist es, aus den experimentellen Ergebnissen Rückschlüsse auf das kontrollierte System zu ziehen. Für dieses Problem der Inversion gibt es keine allgemein anwendbare Vorgehensweise [121, 122, 124–126, 232–234]. Allerdings können die resultierenden elektrischen Felder auf erkennbare Mechanismen der Quantenkontrolle hin untersucht werden. In günstigen Fällen lassen sich so Informationen über die, dem untersuchten Prozess zu Grunde liegenden, Potentialflächen und dessen Quantendynamik gewinnen [124, 127, 232, 233]. Im Allge-

meinen sind die aus einer freien Optimierung, in der ein evolutionärer Algorithmus die am Impulsformer eingestellten Phasenverzögerungen bestimmt, resultierenden Laserpulse für eine solche Analyse nicht geeignet. Diese Impulse weisen einen derart komplizierten Zeit-Frequenz-Verlauf auf, dass man die Funktionalität einzelner Teilstrukturen meist nicht bestimmen kann. Oft ist auch nicht erkennbar, ob der Kontrollprozess schrittweise oder simultan abläuft. Weiterhin erschweren Impulsmerkmale, die keinerlei Funktionalität in Bezug auf das Kontrollziel haben, aber trotzdem nach einer freien Optimierung im Ergebnis-Impuls auftauchen, die Interpretation. Obwohl sich also in einigen wenigen Fällen einfache, gut interpretierbare optimale Laserpulse ergeben [74,87,100,235], kann man sagen, dass sie meisten freien Optimierungen ausgesprochen komplexe elektrische Felder erzeugen.

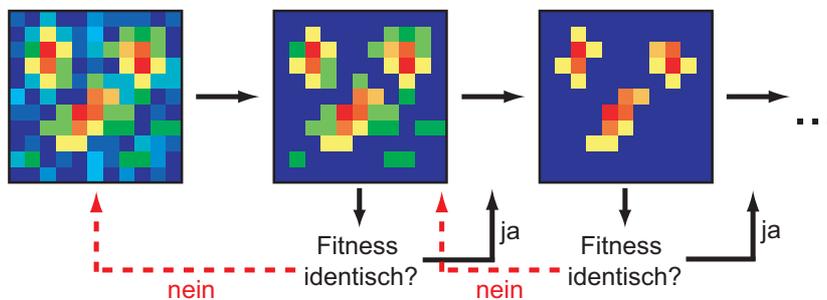
Eine beliebte Strategie diese Komplexität einzuschränken ist es, die Anzahl der Freiheitsgrade des evolutionären Algorithmus zu reduzieren. Während die optimale Lösung bei einer freien Optimierung durch Variation der Phasenverzögerung an jedem einzelnen Pixel des Impulsformers gesucht wird, kann dieser Parameterraum nun wesentlich verkleinert und die Konvergenz zum Optimum beschleunigt werden. Wählt man zudem an den erwarteten Kontrollmechanismus angepasste Parametersätze, wie zum Beispiel Doppelpulse, verschiedene Ordnungen spektraler Phase oder Sequenzen von Mehrfachimpulsen, so können die gefundenen elektrischen Felder auf intuitive Kontrollmechanismen zurückgeführt werden [225,236–239]. Obwohl bei Experimenten mit eingeschränktem Parameterraum nicht immer die volle Kontrolle des Systemes möglich ist [72], können aus diesen Experimenten nützlich Informationen gewonnen werden. Zudem können die Ergebnisse dieser Experimente als Interpretationshilfe für aus freien Optimierungen resultierende elektrische Felder dienen [84,102,118,240–242].

Jeder einzelnen Kombination der, dem Lernalgorithmus zur Verfügung stehenden, Parameter entspricht eine experimentell bestimmbare Fitness des entsprechenden Laserpulses, so dass sich der Lernalgorithmus bei seiner Suche nach einem Optimum durch eine multidimensionale Fitnesslandschaft bewegt. Auf Grund der großen Anzahl an verfügbaren Parametern (bei einem Display mit $2 \cdot 128$ Pixeln und 4095 verschiedenen Einstellungen für die anliegenden Spannung sind es $128^{2 \cdot 4095}$ verschiedene Kombinationen) kann eine solche Fitnesslandschaft nie vollständig ausgemessen werden. Allerdings ist es oft schon aufschlussreich einen stark reduzierten Parameterraum auf diese Weise zu untersuchen. Meist wählt man zwei Parameter und variiert diese systematisch. Die experimentelle Fitness wird dann in einer dreidimensionalen Darstellung als dritte Koordinate verwendet. Bei der Wahl der Parameter bieten sich diejenigen an, die im Rahmen der vermuteten Mechanismen nützliche Informationen enthalten. Nimmt man an, dass sich ein System nach dem Tannor-Kosloff-Rice-Schema an- und abregen lässt, so untersucht man bei festem Anrege-Impuls die Variation der Fitness in Abhängigkeit vom zeitlichen Abstand, der Zentralfrequenz und/oder der relativen Phase des Abrege-Impulses. Aus den Daten des Optimums können dann Rückschlüsse auf die vermutliche Form der Potentiale gezogen werden. Experimente dieser Form, jedoch ohne Berücksichtigung der relativen Phase, wurden bereits durchgeführt [225] und generell sind Fitnesslandschaften und systematische

a) Vermessung von Fitnesslandschaften



b) „Destillation“ essentieller Impulsstrukturen



c) Evolutionäre Optimierungen

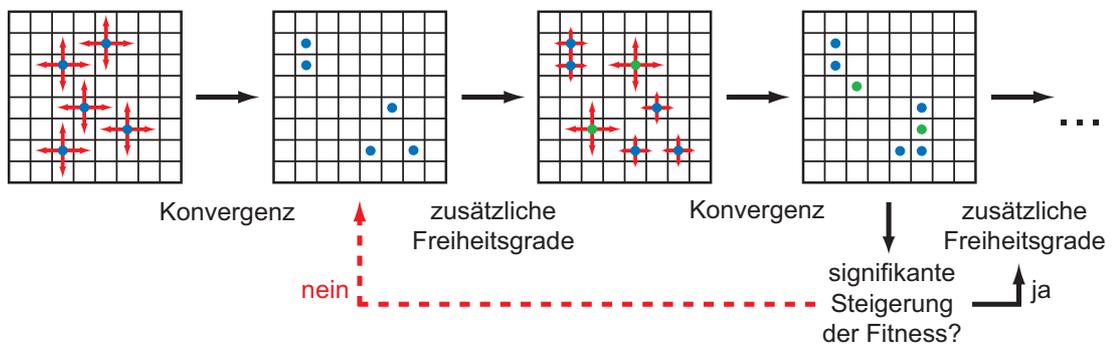


Abbildung 7.13: Verschiedene mögliche Anwendungen der von Neumann-Darstellung in der Quantenkontrolle. (a) Vermessen von Fitnesslandschaften mit elementaren Laserpulsen. (b) „Destillation“ essentieller Impulsstrukturen aus komplexen, „optimalen“ Laserpulsen. (c) Evolutionäre Optimierung im Zeit-Frequenz-Phasenraum. Ausgehend von nur wenigen Freiheitsgraden werden bis zur Sättigung der Fitness nach und nach weitere hinzugefügt.

Parametervariationen inzwischen ein beliebtes Werkzeug zur Interpretation von Experimenten [42, 236, 241, 243–245] oder von Berechnungen [246–250] geworden.

Für eine Parametrisierung im Zeit-Frequenz-Phasenraum, wie in der von Neumann-Darstellung oder auch in der, mit dem vollständigen Basissatz berechneten, komplexen Husimi-Darstellung, ergeben sich aus dem bisher Gesagten drei potentielle Anwendungen in Experimenten zur Quantenkontrolle. In Abbildung 7.13 sind diese Konzepte schematisch dargestellt. Ziel aller drei Ansätze ist es, einen möglichst einfachen optimalen Laserpuls zu erhalten, der nur die zur Kontrolle des Quantensystemes notwendigen Zeit-Frequenz-Strukturen aufweist.

Die naheliegendste Anwendung ist die Evaluation von Fitnesslandschaften (siehe Abbildung 7.13(a)). Hierfür ist die von Neumann-Darstellung eine ideale Parametrisierung, da ihre Basisfunktionen bandbreitebegrenzten Laserpulsen entsprechen. Jeder Laserpuls wird somit aus physikalisch sinnvollen, elementaren Teilimpulsen aufgebaut, deren Positionen im Phasenraum (Zentralfrequenz und Zeitposition), Amplituden und Phasen unabhängig voneinander variiert werden können. Gelingt es, einen aus nur wenigen Teilimpulsen bestehenden optimalen Laserpuls zu finden, so kann dieser im Rahmen des Tannor-Kosloff-Rice-Schemas interpretiert werden [38]. Im Idealfall entspricht jeder Teilimpuls einem Franck-Condon-Übergang zwischen verschiedenen Potentialflächen zu den jeweiligen Zeiten und Anregungsfrequenzen. Dabei erzeugt der erste Teilimpuls ein Vibrationswellenpaket, welches während seiner Propagation in der Zeit immer wieder mit den folgenden Teilimpulsen wechselwirkt. Variiert man die Eigenschaften der verschiedenen Teilimpulse, so verändert man auch die Wechselwirkung mit dem Wellenpaket und somit den Endzustand des Quantensystemes. Zahlreiche Experimente zur Quantenkontrolle mit Doppelimpulsen [14, 15, 225] ebenso wie der erfolgreiche Einsatz von Mehrfachimpulsen in der zeitaufgelösten Spektroskopie [251–256] belegen, dass in diesem Modell ein intuitives Verständnis der Quantendynamik des untersuchten Systemes gewonnen werden kann. Auf Grund der Additivität der von Neumann-Darstellungen (siehe Abschnitt 7.3) ist es möglich, die von Neumann-Darstellung eines Mehrfachimpulses einfach durch Summation der von Neumann-Darstellungen der Einzelimpulse zu gewinnen. Diese können in ihren individuellen Eigenschaften getrennt voneinander definiert werden, so dass die Parametrisierung in der von Neumann-Ebene eine höchst flexible Möglichkeit, systematische Parametervariationen zur Vermessung von Fitnesslandschaften durchzuführen, darstellt. In Kapitel 8 wird gezeigt, dass sich diese Mehrfachimpulse und insbesondere die relative Phase zwischen den einzelnen Teilimpulsen experimentell auf reproduzierbare Weise herstellen lassen. Wie in Abbildung 7.13(a) veranschaulicht, kann man ausgehend von einem beliebigen Laserpuls die Auswirkung eines zusätzlichen Teilimpulses erforschen, indem man seine Phasenraumposition, Phase und Amplitude variiert. Dieser zusätzliche Teilimpuls „fragt“ somit zu verschiedenen Zeiten und damit an verschiedenen Orten der Potentialfläche das Wellenpaket ab. Störend könnte sich lediglich das in Abschnitt 7.2 beschriebene Ausschmieren der von Neumann-Intensität für nicht den Basisfunktionen entsprechende Teilimpulse erweisen. In diesem Fall wird es hilfreich sein, wie oben schon erklärt, statt der von Neumann-Ebene die entsprechende kom-

plexwertige Husimi-Darstellung zu verwenden.

Eine zweite potentielle Anwendung der von Neumann-Darstellung ist die Analyse von, aus freien Optimierungen resultierenden, elektrischen Feldern (siehe Abbildung 7.13(b)). Diese weisen oft unfunktionelle Strukturen auf, die einen komplexen Kontrollmechanismus vortäuschen können. Die Vorgehensweise ist die folgende: Der ursprünglich beste Laserpuls wird zunächst in die von Neumann-Ebene transformiert. Dort werden alle von Neumann-Pixel, deren Intensität unter einem bestimmten Schwellwert liegt, auf Null gesetzt und anschließend die Fitness des daraus resultierenden Feldes ermittelt. Falls diese Fitness nicht wesentlich von der vorherigen abweicht, werden die „gelöschten“ Impulsstrukturen ohne weitere Bedeutung und die Prozedur kann für den nun schon vereinfachten Laserpuls wiederholt werden. Abgebrochen wird, wenn die Fitness des vereinfachten Impulses kleiner als die des komplexeren wird. Auf diese Weise sollte es gelingen wesentliche Impulsstrukturen aus einem komplizierten elektrischen Feld „herauszudestillieren“ und so die Interpretation deutlich zu vereinfachen. Auch hier empfiehlt sich unter Umständen die Verwendung der vollständigen komplexen Husimi-Darstellung, da in der von Neumann-Ebene auf Grund der Überlapp-Matrix auch geringe Intensitäten eine wichtige Funktion besitzen können.

Außer zur Vermessung von Fitnesslandschaften und zur Analyse von Laserpulsen, kann die von Neumann-Darstellung auch als Parametrisierung der experimentell realisierbaren Impulsformen für einen evolutionären Algorithmus genutzt werden. Auf Grund der Bijektivität der von Neumann-Transformation deckt die von Neumann-Ebene exakt denselben Parameterraum ab wie die übliche Beschreibung im Frequenzraum. Während jedoch die Definition der Amplitude und Phase einer Frequenzkomponente über die Fouriertransformation komplizierte Auswirkungen auf den gesamten zeitlichen Impulsverlauf haben kann, bietet eine Definition von Laserpulsen in der von Neumann-Ebene die Möglichkeit, diese aus bandbreitebegrenzten, voneinander unabhängigen Laserpulsen zusammenzusetzen. Wählt man die Pixel der von Neumann-Ebene als Gene für den evolutionären Lernalgorithmus, so wird dieser im Laufe der Optimierung die Amplituden und Phasen der entsprechenden Elementarimpulse einstellen. Dies entspricht der Theorie der Optimalen Kontrolle, die davon ausgeht, dass die bestmögliche Beeinflussung quantenmechanischer Systeme durch eine genau optimierte zeitliche Folge von kurzen Wechselwirkungen mit Lichtimpulsen verschiedener Zentralfrequenzen zu erzielen ist. Eine solche Parametrisierung stellt somit eine wesentliche Verbesserung zu der auf Grund der Bauweise der Impulsformer bislang verwendeten Parametrisierung im Frequenzraum dar.

Zusätzlich ist die Verwendung der von Neumann-Darstellung, neben ihrer potentiellen Anwendung in einer freien Optimierung, zur Entwicklung „intelligenter“ Lernalgorithmen möglich. Diese Algorithmen sollen besser als bisher auf die Bedürfnisse der Quantenkontrolle eingehen und zum Beispiel einfache, bestimmten Kontrollmechanismen entsprechende, Impulsstrukturen bevorzugen. Ein Vorschlag zu einer möglichen Realisierung ist in Abbildung 7.13(c) gezeigt. Begonnen wird mit einer begrenzten Anzahl von Freiheitsgraden. Dabei bedeutet ein Freiheitsgrad in diesem Kontext ein von Null verschiedenes von Neumann-Pixel. Die Amplitude, Phase

und Position wird von einem evolutionären Algorithmus solange variiert, bis es zu einer Konvergenz der Fitness kommt. Erst dann werden weitere Freiheitsgrade hinzugefügt und die Prozedur wiederholt. So werden nach und nach Feinheiten zu der Impulsstruktur hinzugefügt. Erhöht sich die Fitness durch Erhöhen der Anzahl der Freiheitsgrade nicht weiter, ist das Optimum gefunden. Auf diese Weise wird garantiert, dass keine unnötig komplizierten elektrischen Felder gefunden werden. Auch wenn in einigen Fällen das Endergebnis dieser Optimierung verschiedene Mechanismen der Quantenkontrolle beinhalten wird, so wird man selbst dann aus dem Verlauf der Optimierung Rückschlüsse auf die primären Vorgänge ziehen können.

Kapitel 8

Experimentelle Realisierung von von Neumann Laserpulsen

Um die im vorangegangenen Kapitel diskutierten potentiellen Anwendungen der von Neumann-Darstellung tatsächlich experimentell umzusetzen, ist eine möglichst exakte Realisierung der in der von Neumann-Ebene definierten Laserpulse von äußerster Wichtigkeit. So ist es für die Aufnahme einer Fitnesslandschaft notwendig, dass die experimentellen Impulse wirklich den Definierten entsprechen. Im Gegensatz dazu spielte dies bei den meisten der bislang durchgeführten Experimente zur Quantenkontrolle eine untergeordnete Rolle, da eine freie Optimierung im Frequenzraum verwendet wurde. Dabei gewichtet der Lernalgorithmus die verschiedenen Impulsformen nach ihrer experimentellen Fitness und findet so einen optimalen Laserpuls, der anschließend charakterisiert wird. Während der Optimierung ist es somit unerheblich, ob das tatsächliche elektrische Feld wirklich mit dem definierten übereinstimmt. Diese, hauptsächlich auf die nicht perfekten Eigenschaften des Impulsformers zurückzuführenden, Abweichungen werden bei der Verwendung der von Neumann-Darstellung zum Problem, da sie die Aussagekraft der experimentellen Ergebnisse stark einschränken.

Somit muss vor einer experimentellen Anwendung der von Neumann-Darstellung genau ausgelotet werden, wo die prinzipiellen Beschränkungen von Amplituden- und Phasenformung in Hinblick auf eine Implementierung von von Neumann-Basisfunktionen liegen. Wie aus Abschnitt 7.1 bekannt ist, ist derjenige Bereich des Zeit-Frequenz-Phasenraumes, der dem Impulsformer zugänglich ist, von dessen Spektralbereich $\Delta\Omega$ und seinem spektralen Abstand der einzelnen Pixel $\delta\omega$, abhängig. Die von Neumann-Ebene wurde so gewählt, dass sie diesen maximalen Phasenraumausschnitt der Größe $\Delta\Omega \times T$ mit $T = 2\pi/\delta\omega$ entspricht. Tatsächlich ist, wie in den folgenden Abschnitten erklärt, der sinnvoll nutzbare Bereich des Phasenraumes kleiner.

Das für die Experimente genutzte Lasersystem und der verwendete Impulsformer wurden schon ausführlich in den Abschnitten 4.1 und 5.2 vorgestellt. Deshalb erfolgt an dieser Stelle nur eine kurze Zusammenfassung der wichtigsten Daten des

experimentellen Aufbaus.

Der verwendete Titan-Saphir-Oszillator liefert, bei einer Repetitionsrate von etwa 90 MHz, Impulse mit einer Dauer von 60 fs bei einer Zentralwellenlänge von etwa 800 nm. Die Energie beträgt dabei 3 nJ pro Impuls. Der verwendete Amplituden- und Phasenformer benutzt ein zweilagiges LCD mit jeweils 128 Pixeln als SLM. Der abgedeckte Spektralbereich reicht dabei von $2,276 \text{ fs}^{-1}$ bis $2,447 \text{ fs}^{-1}$, woraus sich ein Zeitfenster von $T = 4,66 \text{ ps}$ ergibt. Um eine quadratische von Neumann-Ebene mit 11×11 von Neumann-Pixeln zu ermöglichen, wurden für die Experimente nur 121 der insgesamt 128 LCD-Pixel genutzt. Da, wie man im folgenden Abschnitt 8.1 sieht, die äußeren Pixel des LCD ohnehin nur verschwindend geringe spektrale Intensität aufweisen, stellt dies keine Beeinträchtigung der Experimente dar. Das experimentelle Vorgehen war das folgende: Die Laserpulse wurden als einfache Kombination von von Neumann-Basisfunktionen definiert und anschließend in ein Signal im Frequenzraum transformiert. Unter Berücksichtigung des experimentellen Spektrums und der Eichungen des Impulsformers wurden daraus die anzulegenden LCD-Spannungen berechnet. Die geformten Laserpulse wurden mit der Methode des SHG-FROG (siehe Abschnitt 4.2.2), unter Verwendung eines $100 \mu\text{m}$ dicken BBO-Kristalls, charakterisiert. Die aus der FROG-Trace rekonstruierten Felder wurden anschließend mit der Simulation der von Neumann-Impulse verglichen. Um eine flache spektrale Phase am Impulsformer zu garantieren, wurde die Phase des ungeformten Laserpulses durch eine FROG-Messung bestimmt und diese als Offsetphase zur Impulskompression genutzt.

8.1 Verfügbares Spektrum

Bei der Berechnung von in der von Neumann-Ebene definierten Impulsformen wurde bislang stets davon ausgegangen, dass über den gesamten betrachteten Spektralbereich $\Delta\Omega$ gleichmäßig viel spektrale Intensität zur Verfügung steht. Das experimentell verfügbare Spektrum, weist allerdings eher einen gaußförmigen Intensitätsverlauf auf. Es ist in Abbildung 8.1 als schwarze Linie eingezeichnet. Der verwendete Impulsformer wurde so konstruiert, dass die der maximalen Intensität I_0 entsprechende Zentralfrequenz ω_0 in etwa auf das mittlere Pixel des LCDs fällt. Eine typische Zentralfrequenz, die je nach Abstimmung des Lasers in gewissen Grenzen schwanken kann, ist $\omega_0 = 2,36 \text{ fs}^{-1}$ ($\lambda_0 = 798,2 \text{ nm}$) bei einer spektralen Halbwertsbreite von $\Delta\omega = 0,06 \text{ fs}^{-1}$. Für einen idealen Amplitudenformer sollte die Form des Spektrums, solange es nicht an einer Stelle den Wert Null annimmt, keine Rolle spielen. Teilt man die Zielintensität durch das verfügbare Spektrum, so erhält man die benötigten Transmissionswerte. Dies ist in Abbildung 8.1(a) demonstriert: In der von Neumann-Ebene wurde jeweils ein von Neumann-Pixel (bei $t = 0 \text{ fs}$) auf den Wert Eins gesetzt und der entsprechende Laserpuls als Formungsziel angegeben. Mit dem Spektrometer wurde die spektrale Intensität nach dem Impulsformer aufgenommen und die insgesamt sechs Messungen (jede in einer anderen Farbe) zusammen mit dem ungeformten Spektrum (schwarz) dargestellt. Wie erwartet, ergibt jede einzelne der

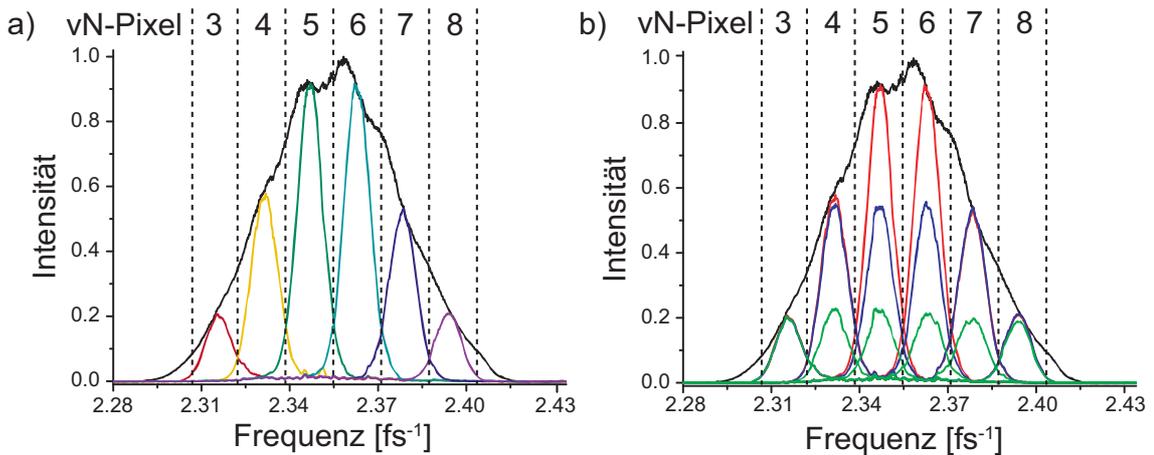


Abbildung 8.1: Vermessung des spektralen Fensters. Der Verlauf des experimentellen Spektrums (schwarz) muss bei Experimenten mit Amplitudenformung berücksichtigt werden. (a) Von Neumann-Impulse verschiedener Zentralfrequenzen ($t = 0$ fs). Für jeden dieser bandbreitebegrenzten Laserpulse ist die maximale Intensität durch das verfügbare experimentelle Spektrum begrenzt. (b) Angleichung der Maximalintensität mehrerer von Neumann-Impulse. Je nach benötigter Impulsenergie können gleichzeitig zwei (rot), vier (blau) oder sechs (grün) von Neumann-Basisfunktionen genutzt werden.

Messungen einen gaußförmigen Intensitätsverlauf, dessen Maximum sich genau dem ungeformten Spektrum anpasst.

Obwohl die gemessenen Spektren sehr gut mit den Erwarteten übereinstimmen, werden an Hand von Abbildung 8.1(a) zwei Probleme deutlich: Zum einen weisen reelle Impulsformer, wie an der roten und der violetten Kurve in Abbildung 8.1(a) besonders gut zu erkennen, eine gewisse Resttransmission auf. In unserem Fall liegt diese bei etwa 3% der verfügbaren Intensität, was sich durch die 3% der Gesamtfläche des Flüssigkristalldisplays einnehmenden Pixelzwischenräume (siehe Abschnitt 5.2) begründen läßt. Sinkt die maximale gesetzte Transmission unter diesen Wert ab, so verschwinden die zu formenden Impulsstrukturen im Untergrund der Resttransmission.

Ein größeres Problem ist jedoch, dass die maximale Intensität bei einer bestimmten Frequenz der des ungeformten Spektrums bei dieser Frequenz entspricht. Infolgedessen hängt die maximal verfügbare Impulsenergie der von Neumann-Impulse stark davon ab, in welchem Bereich des Spektrums diese definiert werden. So muss man, abhängig davon wie viel Impulsenergie für ein Experiment benötigt wird, die Anzahl der definierbaren von Neumann-Pixel einschränken. Mit dem vorliegenden Laserspektrum wäre es zum Beispiel wenig sinnvoll die von Neumann-Pixel 1 und 2 oder 9 bis 11 zu setzen, da hier ohnehin keine messbare spektrale Intensität zur Verfügung steht.

Möchte man verschiedene, in der von Neumann-Ebene definierte, Impulse vergleichen, so muss sicher gestellt werden, dass eine von Neumann-Intensität von eins

stets dieselbe spektrale Intensität des geformten Impulses nach sich zieht. Da man dazu die maximale spektrale Intensität aller verwendeten von Neumann-Pixel auf die des schwächsten einschränken muss, ist auch hier zunächst zu überlegen, wie viel Impulsenergie für das jeweilige Experiment benötigt wird. Wie in Abbildung 8.1(b) gezeigt, können dann für hohe benötigte Intensitäten nur zwei von Neumann-Pixel (rot), für mittlere Intensitäten vier von Neumann-Pixel (blau) und für relativ geringe Intensitäten sechs von Neumann-Pixel (grün) verwendet werden.

Somit stehen uns in Frequenzrichtung nur maximal sechs von elf von Neumann-Pixeln tatsächlich zur Verfügung. Allerdings ist dieses Problem nur insofern prinzipieller Natur, als dass das experimentelle Spektren eher selten einen flachen Intensitätsverlauf zeigen und Impulsformer meist so konstruiert werden, dass das komplette verfügbare Spektrum durch das LCD passt. Würde man gerne alle von Neumann-Basisfunktionen nutzen, so müsste im Zweifelsfall ein Impulsformer konstruiert werden, der die schwachen Anteile des Spektrums abschneidet und somit an den Grenzen des LCDs noch über hinreichend viel spektrale Intensität verfügt.

8.2 Realisierung von Doppelimpulsen

Als erstes Beispiel für die experimentelle Umsetzung von in der von Neumann-Ebene definierten Laserpulsen soll ein Doppelimpuls mit zwei gleich intensiven Teilimpulsen bei $(\omega_1 = 2,346 \text{ fs}^{-1}, t_1 = -430 \text{ fs})$ und $(\omega_2 = 2,377 \text{ fs}^{-1}, t_1 = 0 \text{ fs})$ dienen. Die definierte von Neumann-Intensität und Phase sind in Abbildung 8.2(a) gezeigt. Aus dieser Darstellung wurde das entsprechende Signal im Frequenz- und im Zeitraum (rote gestrichelte Linien in Abbildung 8.2(c) und (f)) berechnet. Die lineare spektrale Phase bei niedrigen Frequenzen rührt von der zeitlichen Verschiebung des ersten Teilimpulses her. Da der zweite Teilimpuls nicht in der Zeit verschoben wurde, ist der erwartete Phasenverlauf durchgehend Null.

Aus dem Signal im Frequenzraum, wurden unter Berücksichtigung des verfügbaren Laserspektrums die an den zwei Schichten des Impulsformers anzulegenden Phasenmuster berechnet. Dabei wurde zusätzlich darauf geachtet, dass in Bereichen geringer spektraler Intensität eine möglichst flache Phase vorliegt. Dies hat den Grund, dass so unerwünschte Transmission auf Grund von Sprüngen in der Phasenfunktion vermieden werden kann. Unter Zuhilfenahme von Gleichung (5.26) wurde die Auswirkung dieser pixelierten Phasenmasken auf den geformten Laserpuls simuliert. Bei dem Ergebnis dieser Simulation handelt es sich um das in einem Experiment im besten Fall zu erwartende Ergebnis. Sowohl das simulierte Signal im Frequenzraum (grüne Linie in Abbildung 8.2(c)) als auch das simulierte zeitliche Signal (grüne Linie in Abbildung 8.2(f)) zeigen deutliche Abweichungen vom ursprünglich definierten, idealen Signal. So verursacht die Pixelierung in dem mit einer linearen Phase versehenen Teil des Spektrums schwache, modulierte Störungen (linke Hälfte der grünen Linie in Abbildung 8.2(c)). Die Ursache hierfür ist die endliche Größe des Fokus auf den LCD-Pixeln. Es gibt somit stets spektrale Anteile, die auf zwei Pixel gleichzeitig treffen und deshalb unterschiedlich stark verzögert wer-

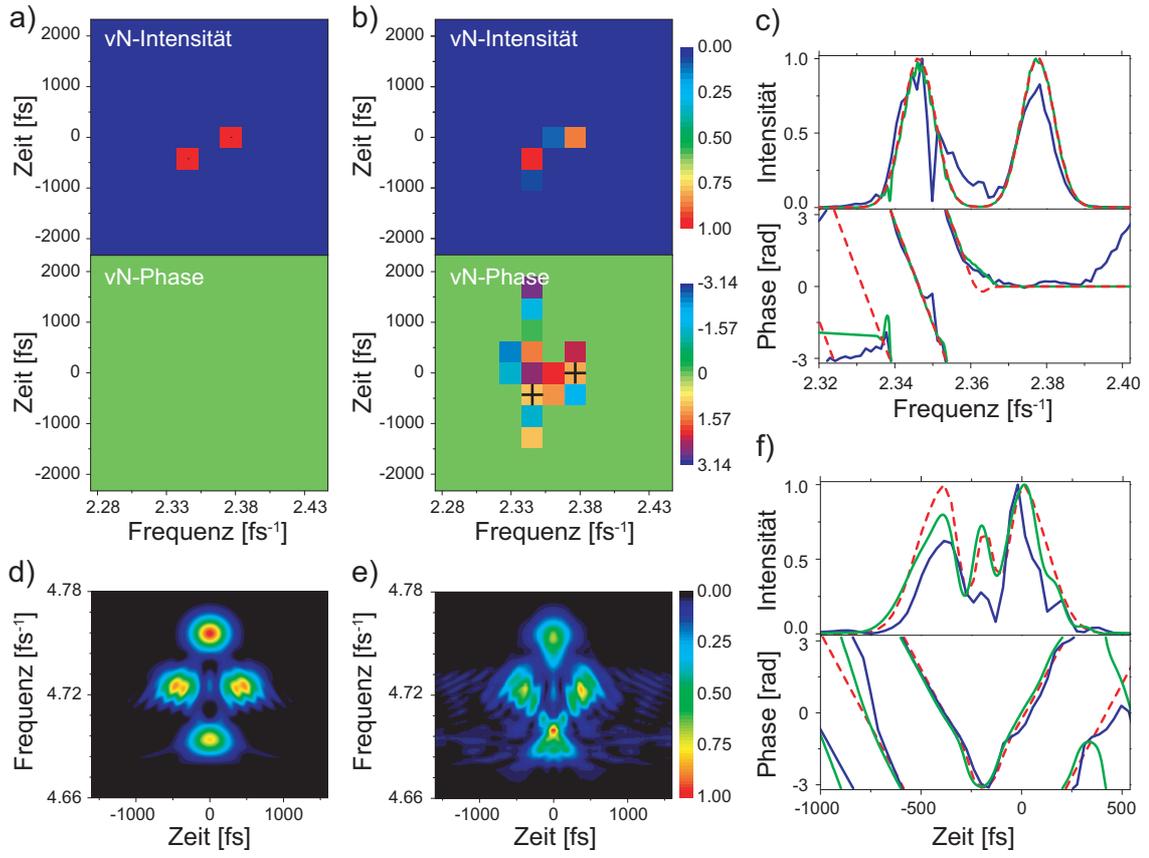


Abbildung 8.2: Experimentelle Realisierung eines in der von Neumann-Ebene definierten Doppelimpulses. Die beiden Teilimpulse haben gleiche Intensität und sind bei $(\omega_1 = 2,346 \text{ fs}^{-1}, t_1 = -430 \text{ fs})$ und $(\omega_2 = 2,377 \text{ fs}^{-1}, t_1 = 0 \text{ fs})$ positioniert. (a) Definierte von Neumann-Darstellung. (b) Aus den experimentellen Daten gewonnene von Neumann-Darstellung. (c) Elektrisches Feld in Frequenzdarstellung. Gestrichelte, rote Linie: Definiertes elektrisches Feld, Grüne Linie: Unter Berücksichtigung der Pixelierung des Impulsformers simuliertes elektrisches Feld, Blaue Linie: Aus der SHG-FROG-Trace rekonstruiertes elektrisches Feld. (d) Simulierte SHG-FROG-Trace. (e) Gemessene SHG-FROG-Trace. (f) Elektrisches Feld im Zeitraum, Farben wie in (c).

den. In Abhängigkeit des Phasenunterschiedes zwischen den beiden Teilen kommt es nach dem Nulldispersionskompressor zu Interferenz. Dies bewirkt Modulationen im Spektrum, die mit zunehmender Phasendifferenz zwischen benachbarten Pixeln immer ausgeprägter werden. Beim Signal im Zeitraum erkennt man hingegen, dass der erste Teilimpuls eine deutlich geringere Intensität als der zweite hat. Wie es in Abschnitt 5.2.4 ausführlich erklärt wurde, und an Hand von Gleichung (5.29) gut nachzuvollziehen ist, ist für diesen Effekt das sinc-förmige Zeitfenster des Impulsformers verantwortlich. Generell lässt es sich bei der Implementierung von in der von Neumann-Ebene definierten Mehrfachimpulsen leider nicht vermeiden, dass entweder die relativen zeitlichen Intensitäten oder aber die relativen spektralen Intensitäten vom definierten Signal abweichen, da die von Neumann-Transformation

die Pixelierung des Impulsformers nicht berücksichtigt. Allerdings sei angemerkt, dass es wegen des Zeitfensters des Impulsformers prinzipiell nur bei symmetrisch in der Zeit platzierten Doppelimpulsen möglich ist, sowohl im Zeitraum als auch im Frequenzraum gleiche Intensität in beiden Teilimpulsen zu erzielen.

Wie oben schon erwähnt, wurden die geformten Laserpulse mit einem SHG-FROG charakterisiert. Zunächst wurde die aus dem simulierten elektrischen Feld berechnete FROG-Trace (Abbildung 8.2(d)) mit der gemessenen FROG-Trace (Abbildung 8.2(e)) verglichen. Es liegt eine gute Übereinstimmung vor, nur im unteren Teil der FROG-Trace sind deutliche Abweichungen sichtbar. Dieser Teil wird von dem in der Zeit verschobenen Teilimpuls erzeugt. Auch das durch Rekonstruktion der FROG-Trace gewonnene spektrale und zeitliche elektrische Feld (blaue Linien in Abbildung 8.2(c) und (f)) bestätigen diese Beobachtung. Die größte Abweichung vom simulierten Feld tritt auch hier für den Teilimpuls bei $t_1 = -430$ fs auf. Die größte Störung im Spektrum, ein tiefer Einschnitt bei $\omega = 2,35$ fs⁻¹, tritt ebenfalls im zu diesen Teilimpuls gehörigen Spektralbereich auf.

Meist werden solche Störungen der Impulsform durch Unstetigkeiten in der Phasenfunktion, also Unstetigkeiten in den anliegenden Spannungen, verursacht. Diese Phasensprünge lassen sich wegen des eingeschränkten Formungsbereiches von 2π rad Phase nicht vermeiden, so dass jeder von dem Nullpunkt der Zeit entfernte von Neumann-Impuls einige solcher Phasensprünge aufweisen wird. Da die Auswirkungen solcher Phasensprünge schon in Abschnitt 5.2.4 beschrieben wurden, soll hier eine speziell auf das Beispiel des vorliegenden Doppelimpulses zugeschnittene Analyse gegeben werden.

Die zum Verständnis notwendigen Daten sind in Abbildung 8.3 dargestellt. In Abbildung 8.3(a) sieht man in Schwarz das Spektrum des ungeformten Laserpulses, in Blau die gewünschte Intensitätsverteilung, in gestricheltem Rot die dazugehörige Phase und in Grün die resultierende Transmission. Aus Abschnitt 5.2.3 ist bekannt, dass bei Amplituden- und Phasenformung die Amplitude über die Phasendifferenz zwischen den beiden LCD-Schichten gesteuert wird. Für eine Phasendifferenz $\Delta\Phi = 0$ rad ergibt sich maximale Transmission, für $\Delta\Phi = \pi$ rad hingegen minimale. Die spektrale Phase ergibt sich einfach als Mittelwert der angelegten Phasenverzögerungen. Zu den aus Transmission und spektraler Phase berechneten Phasenverzögerungen wird noch eine Offsetphase addiert, die vor dem Experiment durch Charakterisierung des ungeformten Impulses durch SHG-FROG ermittelt wurde. Die so erhaltenen Phasenverzögerungen sind in Abbildung 8.3(b) für die zwei verschiedenen LCD-Schichten in Rot und Schwarz dargestellt. Aus ihnen werden unter Benutzung der Kalibrationskurven des Impulsformers die anzulegenden Spannungen ausgerechnet, die in Abbildung 8.3(c) zu sehen sind. In Abhängigkeit von den Werten der jeweils zweiten LCD-Schicht können Sprünge in der Phase signifikante Störungen in der Impulsform auslösen. Ein besonders ungünstiges Zusammenspiel der Werte an beiden LCD-Schichten liegt offensichtlich bei $\omega = 2,35$ fs⁻¹ vor, wo der Phasensprung in der schwarz markierten LCD-Lage massive Abweichungen der spektralen Intensität verursacht.

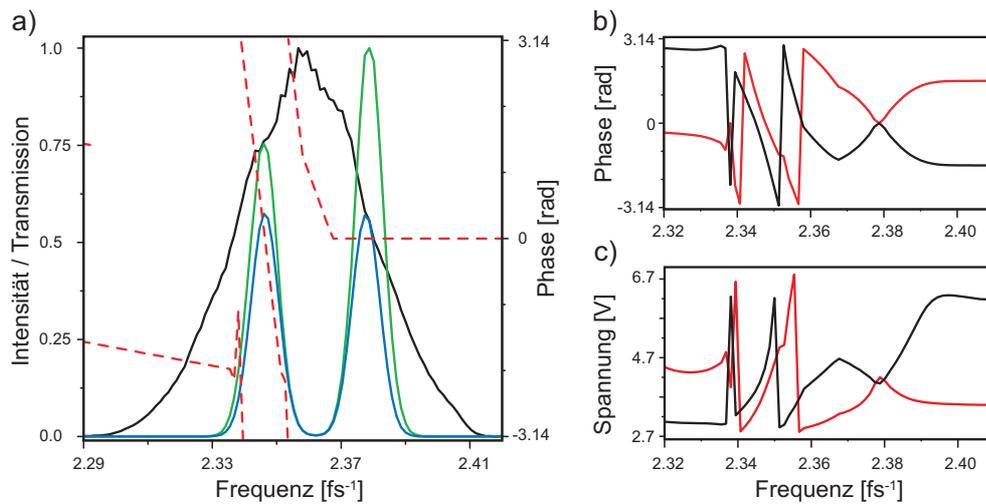


Abbildung 8.3: Details zur Realisierung eines Doppelimpulses durch Amplituden- und Phasenformung. (a) Der Doppelimpuls aus Abbildung 8.2 wird aus dem verfügbare Laserspektrum (schwarze Linie) geformt. Aus dem gewünschten Intensitätsverlauf (blaue Linie) wird die benötigte Transmission (grüne Linie) bestimmt. Zusammen mit der gewünschten spektralen Phase (rote, gestrichelte Linie) bestimmt diese die anzulegenden Phasenmuster an den beiden LCD-Schichten (rote und schwarze Linie in (b)). Unter Berücksichtigung der Kalibrationskurven des Impulsformers ergeben sich schließlich die am LCD einzustellenden Spannungswerte (dargestellt in (c)).

Die auf Phasensprünge zurückzuführenden Störungen der geformten Laserpulse lassen sich nur schwer simulieren, da sie auf einer Phaseninterpolation über die Pixelzwischenräume von $3\mu\text{m}$ Breite beruhen. Muss eine große Phasendifferenz ausgeglichen werden, so ergeben sich in diesen Bereichen unerwünschte mittlere Phasenwerte, die in Kombination mit den an der zweiten LCD-Schicht anliegenden Phasenwerten Abweichungen von den eingestellten Transmissionswerten verursachen. Zur Vermeidung dieses Problem es empfiehlt es sich, den Formungsbereich des verwendeten LCDs, sofern möglich, von 2π auf 4π oder sogar 6π zu erweitern und so die Anzahl der Phasensprünge zu halbieren beziehungsweise zu dritteln. Verschiebt man problematische Phasensprünge durch Addition einer konstanten spektralen Phase in Bereiche geringer spektraler Intensität, so kann man eine weitere Verringerung des Problem es erreichen. Die optimale Lösung wäre es, ein LCD ohne oder mit möglichst kleinen Abständen zwischen den Pixeln zu verwenden. Deshalb muss vor jedem Experiment abgewogen werden, wie viele Phasensprünge man maximal erlauben möchte, das heißt, welches Ausmaß an Störungen der Impulsform man zu Gunsten eines größeren zugänglichen Bereiches in der Zeit in Kauf nehmen möchte.

Insgesamt zeigt die Rekonstruktion der FROG-Trace eine sehr gute Übereinstimmung mit dem ursprünglich definierten elektrischen Feld. Insbesondere die zeitliche und die spektrale Phase sind in Bereichen mit nennenswerter Intensität fast deckungsgleich mit den entsprechenden definierten Phasen. Dies zeigt sich auch in der aus den gemessenen elektrischen Feldern rekonstruierten von Neumann-

Ebene (Abbildung 8.2(b)). Hier ist die Intensität im wesentlichen auf die zwei ursprünglich definierten von Neumann-Pixel konzentriert. Die Intensität der anderen von Neumann-Pixel beträgt maximal 7% der maximalen Intensität, für die meisten Punkte im Phasenraum liegt sie bei Werten kleiner oder gleich 2%. In der Darstellung der von Neumann-Phase wurden zur Erhöhung der Übersichtlichkeit Pixel, deren Intensität kleiner als 0,5% der Maximalintensität ist, gleich Null gesetzt. Die schwarzen Kreuze markieren die Position der ursprünglich definierten von Neumann-Pixel. Es ist besonders hervorzuheben, dass die relative Phase zwischen den beiden Subimpulsen in exzellenter Übereinstimmung mit der Definition ist. Dass die absolute Phase von Null abweicht, spielt hierbei keine Rolle, da sie vom FROG-Rekonstruktionsalgorithmus ohnehin nicht bestimmt werden kann und reinen zufälligen Wert zugewiesen bekommt. Diese sehr gute Rekonstruktion der relativen Phase zwischen verschiedenen von Neumann-Pixeln wurde auch mit anderen, hier nicht gezeigten Impulsformen bestätigt, weshalb davon ausgegangen werden kann, dass die relative Phase zwischen zwei Teilimpulsen zuverlässig als Parameter bei der Aufnahme von Fitnesslandschaften verwendet werden kann.

8.3 Darstellung eines Dreifachimpulses

In Abbildung 8.4 ist als zweites Beispiel die experimentelle Realisierung eines Dreifachimpulses mit Teilimpulsen bei $(\omega_1 = 2,362 \text{ fs}^{-1}, t_1 = -860 \text{ fs})$, $(\omega_2 = 2,362 \text{ fs}^{-1}, t_2 = 0 \text{ fs})$ und $(\omega_3 = 2,330 \text{ fs}^{-1}, t_3 = 0 \text{ fs})$ dargestellt. Da der erste und der zweite Teilimpuls dieselbe Zentralfrequenz $\omega_1 = \omega_2$ besitzen, aber zu unterschiedlichen Zeiten $t_1 \neq t_2$ auftreten beobachtet man, wie am Verlauf des zeitlichen elektrischen Feldes (Abbildung 8.4(c)) ersichtlich, spektrale Interferenz. Analog dazu verursacht das gleichzeitige Auftreten zweier Teilimpulse mit unterschiedlicher Zentralfrequenz $\omega_2 \neq \omega_3$ Interferenz im Zeitraum, die in Abbildung 8.4(f) deutlich zu erkennen ist. Diese Interferenzen sind auch in den simulierten und gemessenen FROG-Traces (Abbildung 8.4(d) und (e)) sichtbar. Hierbei entsprechen die horizontalen Strukturen um $\omega = 4,665 \text{ fs}^{-1}$ und $t = 0 \text{ fs}$ der spektralen Interferenz, die vertikalen Strukturen bei $\omega = 4,645 \text{ fs}^{-1}$ und $t = 0 \text{ fs}$ hingegen der zeitlichen Interferenz.

Die Übereinstimmung zwischen simulierter und experimenteller FROG-Trace (Abbildung 8.4(d) und (e)) ist exzellent, ebenso die zwischen den simulierten und den rekonstruierten elektrischen Feldern (grüne und blaue Linien in Abbildung 8.4(c) und (f)). Während der Verlauf des gemessenen spektralen elektrischen Feldes (grüne Linie) fast identisch mit dem definierten Feld (gestrichelte rote Linie) ist, zeigen sich beim zeitlichen elektrischen Feld leichte Abweichungen: Der zu $t_1 = -860 \text{ fs}$ verschobene Teilimpuls ist deutlich schwächer als erwartet. Diese Abweichung lässt sich, wie auch schon im vorangegangenen Beispiel, durch das sinc-förmige Zeitfenster des Impulsformers erklären, welches die zeitliche Intensität von zeitlich verschobenen Laserpulsen im Vergleich zu der von unverschobenen Impulsen reduziert.

Der Vergleich der aus dem rekonstruierten elektrischen Feld erhaltenen

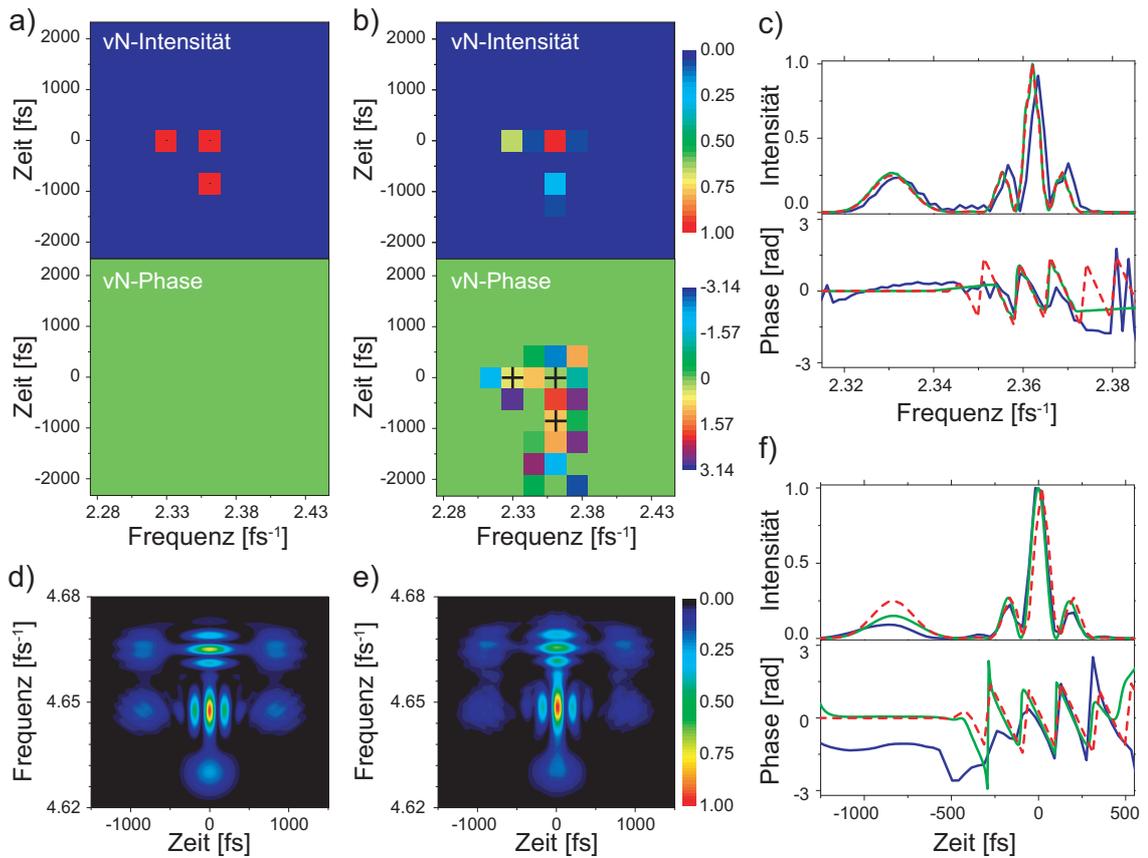


Abbildung 8.4: Beispiel zur experimentellen Realisierung eines in der von Neumann-Ebene definierten Dreifachimpulses mit Teilimpulsen bei $(\omega_1 = 2,362 \text{ fs}^{-1}, t_1 = -860 \text{ fs})$, $(\omega_2 = 2,362 \text{ fs}^{-1}, t_2 = 0 \text{ fs})$ und $(\omega_3 = 2,330 \text{ fs}^{-1}, t_3 = 0 \text{ fs})$. (a) Definierte von Neumann-Darstellung. (b) Aus den experimentellen Daten gewonnene von Neumann-Darstellung. (c) Elektrisches Feld in Frequenzdarstellung. Gestrichelte, rote Linie: Definiertes elektrisches Feld, Grüne Linie: Unter Berücksichtigung der Pixelierung des Impulsformers simuliertes elektrisches Feld, Blaue Linie: Aus der SHG-FROG-Trace rekonstruiertes elektrisches Feld. (d) Simulierte SHG-FROG-Trace. (e) Gemessene SHG-FROG-Trace. (f) Elektrisches Feld im Zeitraum, Farben wie in (c).

von Neumann-Ebene (Abbildung 8.4(b)) mit der ursprünglich definierten, zeigt auch bei diesem Beispiel eine gute Übereinstimmung. In der von Neumann-Intensität sind drei Maxima an den Positionen der definierten von Neumann-Pixel zu erkennen. Der Teilimpuls bei $t_1 = -860 \text{ fs}$ weist aus den schon erwähnten Gründen eine verminderte Intensität auf. Nicht wirklich ersichtlich ist, wieso der dritte Teilimpuls bei $t_3 = 0 \text{ fs}$ eine soviel schwächere von Neumann-Intensität als der zweite Teilimpuls hat. Die Ursache hierfür könnte eine vom FROG-Algorithmus fehlerhaft rekonstruierte spektrale Phase sein. Tatsächlich sind in Abbildung 8.4(c) Abweichungen zwischen der simulierten spektralen Phase (grüne Linie) und der aus der FROG-Trace rekonstruierten spektralen Phase (blaue Linie) zu erkennen. Nichtsdestotrotz stimmen die relativen von Neumann-Phasen der drei Pixel (markiert durch schwarze

Kreuze) sehr gut mit den definierten überein.

Zusammenfassend kann man sagen, dass es mit sehr guter Genauigkeit möglich ist in der von Neumann-Ebene definierte Laserpulse experimentell zu realisieren. Abgesehen von der limitierten Bandbreite sind dabei die Unstetigkeiten in der am Impulsformer angelegten Phase das größte Problem. Diese Phasensprünge verursachen in dem Bereich zwischen zwei benachbarten LCD-Pixeln unerwünschte Zwischenwerte, die zusammen mit den Werten der jeweils zweiten LCD-Schicht zu starken Veränderungen der eigentlich angelegten Transmission führen können. Neben einer Verkleinerung der Pixelzwischenräume ist die Vermeidung von Unstetigkeiten in der Phasenfunktion die einzige Lösung. Dazu muss der verwendete Impulsformer einen möglichst großen Formungsbereich aufweisen. Dieser wird oft automatisch auf 2π gesetzt, obwohl tatsächlich ein größerer Bereich möglich wäre. Eine sorgfältige Analyse der Spannungskalibration des verwendeten LCD kann über solche eventuell verfügbaren Reserven Auskunft geben. Wird ein Impulsformer neu aufgebaut, so empfiehlt es sich einen reflektiven Aufbau (siehe Abschnitt 5.2) zu wählen, da so auf einfache Weise der verfügbare Formungsbereich verdoppelt werden kann. So unangenehm die beschriebenen Probleme auch sein mögen, so sind diese nicht in der von Neumann-Darstellung begründet. Vielmehr treten sie immer dann auf, wenn die Technik der Amplituden- und Phasenformung mit LCDs verwendet wird. Löst man mit den oben beschriebenen Verbesserungen das Problem der Phasensprünge, so sind auch in der Zeit weit verschobene von Neumann-Impulse mit sehr guter Genauigkeit realisierbar.

Kapitel 9

Zusammenfassung

Die Verfügbarkeit von Femtosekundenlaserpulsen und Techniken, diese in Amplitude, Phase und/oder Polarisation zu manipulieren, hat zur Entwicklung zahlreicher Konzepte zur Kontrolle quantenmechanischer Prozesse durch Wechselwirkung mit „maßgeschneiderten“ Lichtimpulsen geführt. Die Theorie der optimalen Kontrolle erlaubt es, in einfachen Fällen die beste Impulsform für ein vorgegebenes Kontrollziel zu finden, versagt aber bei komplexen Systemen, wie zum Beispiel polyatomaren Molekülen.

Der Durchbruch wurde mit der experimentellen Realisierung der adaptiven Quantenkontrolle erzielt. Hierbei wird die optimale Impulsform iterativ von einem, mit einem experimentellen Rückkopplungssignal versorgten, Lernalgorithmus bestimmt. Der große Vorteil dieser Technik ist, dass keinerlei Vorkenntnis über das zu kontrollierende System benötigt wird, da das Molekül selbst die Suche nach der optimalen Impulsform steuert.

Dieses inzwischen wohl erfolgreichste Verfahren zur experimentellen Steuerung quantenmechanischer Systeme hat jedoch einen Nachteil: Es ist schwer, wenn nicht sogar unmöglich, den tatsächlichen Kontrollmechanismus aus der zeitlichen Struktur des optimalen Laserpulses zu erkennen. Aus diesem Grund wurden die aus der Quantenmechanik stammenden Wigner- und Husimi-Phasenraumdarstellungen zur Beschreibung ultrakurzer Laserpulse angepasst. Sie erlauben einen simultanen, intuitiven Zugang zur zeitlichen und spektralen Struktur der dargestellten Laserpulse und können somit deren Interpretation wesentlich vereinfachen.

Die in der vorliegenden Arbeit eingeführte von Neumann-Darstellung beschreibt jeden Laserpuls auf eineindeutige Weise als Summe von an verschiedenen Punkten des Zeit-Frequenz-Phasenraumes zentrierten, bandbreitebegrenzten Gaußimpulsen. Diese Laserpulse bilden sozusagen die „elementaren“ Bausteine, aus denen jeder beliebige Lichtimpuls konstruiert werden kann. Die von Neumann-Darstellung vereint eine Reihe von Eigenschaften, die sie für eine Anwendung auf dem Gebiet der Quantenkontrolle besonders geeignet erscheinen lässt. So ist sie eine bijektive Abbildung zwischen den Freiheitsgraden des verwendeten Impulsformers und der Phasenraumdarstellung der resultierenden, geformten Laserpulse. Das heißt: Jeder denkbaren

Wahl von Impulsformerparametern entspricht genau eine von Neumann-Darstellung und umgekehrt. Trotzdem ermöglicht sie, ebenso wie die Husimi- oder die Wigner-Darstellung, eine intuitive Interpretation der dargestellten Lichtimpulse, da deren zeitliche und spektrale Struktur sofort zu erkennen ist.

Der einzige Nachteil dieser neuen Phasenraumdarstellung ist, dass es auf Grund des nicht zu vernachlässigenden Überlapps der Basisfunktionen bei bestimmten Impulsformen zu einem unphysikalischen Ausschmieren der Strukturen in der von Neumann-Darstellung kommen kann. Sollte dies bei der Anwendung der von Neumann-Darstellung in der Quantenkontrolle hinderlich sein, so bietet sich als Alternative die, ebenfalls in dieser Arbeit eingeführte, komplexwertige Husimi-Darstellung an. Wählt man dieselben Phasenraumpunkte wie für die von Neumann-Darstellung, so ist auch sie eine eindeutige Abbildung zwischen den Impulsformerparametern und der Phasenraumdarstellung.

Die Bijektivität der von Neumann-Darstellung eröffnet, abgesehen von einer reinen Interpretation elektrischer Felder, neue Anwendungsbereiche, die mit keiner der bislang verwendeten Phasenraumdarstellungen zugänglich waren. Es ist nun erstmals möglich, Impulsformung direkt im Zeit-Frequenz-Phasenraum zu durchzuführen. Die gewünschte Impulsform wird als Summe elementarer, bandbreitebegrenzter Laserpulse definiert, in die Frequenzraumdarstellung umgewandelt und mit dem Impulsformer experimentell umgesetzt. Da diese elementaren Teilimpulse gewissermaßen eine natürlichere Basis für Quantenkontrollexperimente bilden als die bislang verwendeten Parametrisierungen ausschließlich im Zeit- oder Frequenzraum, besteht begründete Hoffnung, dass ein adaptives Kontrollexperiment in der neuen Basis einfachere und besser interpretierbare optimale Lichtimpulse liefert.

So ist es zum einen denkbar, die von Neumann-Darstellung zur Analyse komplexer Impulsformen einzusetzen, indem man deren Zeit-Frequenz-Strukturen der Reihe nach auf ihre Funktionalität testet und schließlich die essentielle Impulsform aus einer ursprünglich sehr komplizierten „herausdestilliert“. Aber auch die direkte Verwendung der von Neumann-Darstellung als Parametrisierung der Laserpulse in einem Experiment zur adaptiven Quantenkontrolle ist ein vielversprechender Ansatz. Hierbei ist es möglich, einen neuen Typ von „intelligenten“ Lernalgorithmen zu entwickeln, die die Zahl der ihnen zur Verfügung stehenden Freiheitsgrade (hier: Anzahl der verwendeten elementaren Laserpulse) stets nur soweit erhöhen, wie es das jeweilige Optimierungsziel erfordert.

Die erhöhte Flexibilität für Optimierungsexperimente lässt sich exemplarisch dadurch aufzeigen, dass es in der von Neumann-Darstellung auch ganz besonders einfach ist, die Wirkung von Mehrfachimpulsstrukturen auf ein quantenmechanisches System zu erforschen. Für eine systematische Variation der relativen Phasen, Amplituden und Positionen im Phasenraum genügt es wegen der Additivität der von Neumann-Darstellung, die jedem einzelnen Teilimpuls entsprechende Phasenraumdarstellung zu berechnen und anschließend über alle Teilimpulse zu summieren.

Notwendige Bedingung für eine experimentelle Realisierung dieser Anwendungsvor-

schläge ist, dass in der von Neumann-Darstellung definierte Laserpulse zuverlässig experimentell umgesetzt werden können. Mit einem im Rahmen dieser Arbeit neu gestalteten Impulsformer wurden die Grenzen der Amplituden- und Phasenformung mit Flüssigkristalldisplays ausgelotet. Innerhalb dieser Grenzen lassen sich von Neumann-Laserpulse in guter Übereinstimmung mit ihrer Definition realisieren. Die wesentlichen Einschränkungen rühren dabei von der begrenzten spektralen Breite des zur Verfügung stehenden Laserspektrums und von den durch den geringen Phasenformungsbereich des verwendeten Impulsformers verursachten Sprüngen in der spektralen Phase her. Um die Möglichkeiten der von Neumann-Darstellung vollständig auszuschöpfen, wäre also ein breiteres Laserspektrum und ein Impulsformer mit einem größeren Formungsbereich wünschenswert.

Diese Arbeit stellt den Formalismus und die grundlegenden experimentellen Techniken zur Verwendung der von Neumann-Darstellung zur adaptiven Kontrolle quantenmechanischer Systeme bereit. Im Gegensatz zu anderen Phasenraumdarstellungen ist die von Neumann-Darstellung eine bijektive Abbildung vom Raum der experimentell realisierbaren Impulse zu deren Phasenraumdarstellung. Diese Eigenschaft verspricht, bislang verborgen gebliebene Mechanismen der Quantenkontrolle mit geformten Laserpulsen sichtbar werden zu lassen und somit dem Verständnis der Quantenmechanik molekularer Systeme einen Schritt näher zu kommen.

Conclusion

The availability of femtosecond laser pulses, together with the progress in the field of ultrafast pulse shaping, resulted in the development of many different concepts to control quantum mechanical processes using “tailored” laser pulses. For small systems optimal control theory allows one to determine the optimal pulse shape for a defined control objective. However, due to the increased complexity of e.g. molecular Hamiltonians, it fails for more elaborate quantum systems.

This problem was overcome by the introduction of an experimental technique called “closed-loop” or adaptive quantum control. Here, the optimal pulse shape is determined in an automated manner by a learning algorithm which adaptively improves the laser pulse shape based on experimental feedback. Since the search for the optimal pulse shape is guided by the quantum system itself, no information about the underlying processes is needed.

This probably most successful experimental implementation of quantum control has one drawback: It is difficult, if not impossible, to unravel the underlying control mechanisms from the temporal structure of the optimal laser pulse. Therefore, the Wigner- and the Husimi-representation, both originating from quantum mechanics, have been adapted to describe ultrashort laser pulses. They significantly facilitate the interpretation of ultrashort laser pulses, because they allow to access their temporal and spectral structure simultaneously and intuitively.

The von Neumann-representation introduced in this thesis describes each laser pulse in a one-to-one manner as a sum of bandwidth-limited, Gaussian laser pulses centered around different points in phase space. These pulses can be regarded as elementary building blocks from which every single laser pulse can be constructed. The von Neumann-representation combines different useful properties for applications in quantum control. First, it is a one-to-one map between the degrees of freedom of the pulse shaper and the phase-space representation of the corresponding shaped laser pulse. In other words: Every possible choice of pulse shaper parameters corresponds to exactly one von Neumann-representation and vice versa. Moreover, since temporal and spectral structures become immediately seizable, the von Neumann-representation, as well as the Husimi- or the Wigner-representations, allows for an intuitive interpretation of the represented laser pulse.

The only problem of this new phase-space representation is that due to the nonvanishing overlap of the used basis functions certain pulse shapes result in an

unphysical smearing of the structures in the von Neumann-representation which cannot be avoided. In case that this effect is inconvenient in an application, the complex-valued Husimi-representation, which is also introduced in this work, might be a valuable alternative. When the corresponding points in phase-space are chosen to be identical with those of the von Neumann-representation, the mapping between pulse shaper parameters and phase-space-representation stays a one-to-one mapping.

The fact that the von Neumann representation is a one-to-one transformation permits its use in new fields of application, which go far beyond a simple interpretation of electric fields. It is now possible to realize pulse shaping directly in the joint time-frequency domain. First, the pulse shape to be implemented is defined in terms of elementary, bandwidth-limited laser pulses. Subsequently, this pulse shape is transformed to the frequency domain and experimentally realized with the pulse shaper. Since these elementary von Neumann-pulses are much better adapted to quantum control than the commonly used parametrizations in frequency and time domain only, prospective adaptive control experiments with this new basis set may result in simpler and more intuitively interpretable optimal pulse shapes.

It is thus possible to use the von Neumann-representation for an analysis of complicated pulse shapes. This could be done by first evaluating the functionality of each time-frequency structure and subsequently “distilling” the essential pulse shape from the original electric field. Using the von Neumann-representation as basis set in an adaptive control experiment is another promising possible application. It would then be possible to develop a new type of “intelligent” learning algorithms, which increase the number of degrees of freedom they use only as much as it is needed to satisfy the respective control objective.

Additionally, the von Neumann representation is especially well adapted to explore the interaction of a multi-pulse structure with a quantum mechanical system. Due to the additivity of the von Neumann-representation, the pulse shapes for systematic scans of parameters like the relative phase, amplitude and phase-space positions of the subpulses can easily be prepared by summing up the von Neumann-representations of the involved pulses.

A necessary condition for an experimental realization of the suggested applications is that it is possible to reliably implement laser pulses defined in the von Neumann-representation. Therefore the limitations of amplitude and phase shaping of femto-second pulses with liquid crystal displays were explored. The employed pulse shaper is an improved polarization shaper which has been constructed within this work. Within these limitations von Neumann laser pulses can be realized with good precision. The major restrictions are the finite width of the available laser spectrum and the jumps in the spectral phase due to the limited phase range of the pulse shaper. To fully profit from the advantages of the von Neumann representation it would therefore be desirable to have a broader spectrum and a pulse shaper with an extended phase range.

This thesis provides the formalism and the basic experimental techniques to use

the von Neumann-representation for the adaptive control of quantum mechanical systems. In contrast to other phase-space representations the von Neumann-representation supplies a one-to-one mapping from the set of implementable pulse shapes to the corresponding phase-space representations. This property might allow one to unravel quantum control mechanisms hidden so far, and thus may contribute to improve our understanding of molecular quantum mechanics.

Anhang A

Analytische Berechnung der Überlappmatrix

In Abschnitt 7.1 wurde die Überlappmatrix

$$S_{(n,m)(i,j)} = \langle \alpha_{\omega_n t_m} | \alpha_{\omega_i t_j} \rangle . \quad (\text{A.1})$$

eingeführt (vergleiche Gleichung (7.15)). Sie ist bei der Berechnung der von Neumann-Darstellung von großer Wichtigkeit, da sie der Nichtorthogonalität der Basis Rechnung trägt. Durch Einsetzen der von Neumann-Basisfunktionen im Frequenzraum

$$|\alpha_{\omega_n t_m}\rangle = \left(\frac{2\alpha}{\pi}\right)^{1/4} \exp[-\alpha(\omega - \omega_n)^2 - it_m(\omega - \omega_n)] , \quad (\text{A.2})$$

erhält man:

$$\begin{aligned} S_{(n,m)(i,j)} &= \sqrt{\frac{2\alpha}{\pi}} \int \exp\{-\alpha[(\omega - \omega_n)^2 + (\omega - \omega_i)^2]\} \\ &\quad \exp[-i\omega(t_j - t_m)] \exp[-i(t_m\omega_n - t_j\omega_i)] d\omega \\ &= d \int \exp(a\omega^2 + b\omega) \exp(i\omega c) d\omega . \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

Zur Vereinfachung der Schreibweise wurden dabei folgende Konstanten eingeführt:

$$a = -2\alpha , \quad (\text{A.4})$$

$$b = 2\alpha(\omega_n + \omega_i) , \quad (\text{A.5})$$

$$c = t_m - t_j , \quad (\text{A.6})$$

$$d = \sqrt{\frac{2\alpha}{\pi}} \exp[-\alpha(\omega_n^2 + \omega_i^2) + i(t_j\omega_i - t_m\omega_n)] . \quad (\text{A.7})$$

Durch quadratisches Ergänzen kann (A.3) auch in folgende Form gebracht werden:

$$S_{(n,m)(i,j)} = d \exp\left(-\frac{b^2}{4a}\right) \int \exp\left[a\left(\omega + \frac{b}{2a}\right)^2\right] \exp(i\omega c) d\omega . \quad (\text{A.8})$$

Durch Substitution von $\tilde{\omega} = \sqrt{|a|} \left(\omega + \frac{b}{2a} \right)$ erhält man das Fourier-Integral

$$S_{(n,m),(i,j)} = \hat{c} \int \exp(-\tilde{\omega}^2) \exp(i\tau\tilde{\omega}) d\tilde{\omega} \quad (\text{A.9})$$

mit den Konstanten

$$\hat{c} = \frac{d}{\sqrt{|a|}} \exp \left[- \left(i \frac{bc}{2a} + \frac{b^2}{4a} \right) \right], \quad (\text{A.10})$$

$$\tau = \frac{c}{\sqrt{|a|}}. \quad (\text{A.11})$$

Unter der Annahme, dass die Basisfunktionen auf der gesamten Frequenzachse definiert sind, kann man die Integration über $\tilde{\omega}$ von $-\infty$ bis ∞ ausführen:

$$S_{(n,m),(i,j)} = \hat{c} \sqrt{\pi} \exp \left(-\frac{\tau^2}{4} \right). \quad (\text{A.12})$$

Nach Einsetzen der Konstanten erhält man schließlich:

$$S_{(n,m),(i,j)} = \exp \left[-\frac{\alpha}{2} (\omega_n - \omega_i)^2 - \frac{1}{8\alpha} (t_j - t_m)^2 \right] \exp \left[\frac{i}{2} (\omega_i - \omega_n) (t_j + t_m) \right]. \quad (\text{A.13})$$

Dieser Ausdruck kann weiter vereinfacht werden. Für den Phasenfaktor erhält man mit $\omega_i - \omega_n = (i - n)\Delta\omega$ und $t_j + t_m = (j + m - N)\Delta t$ folgenden Term:

$$P_{(n,m),(i,j)} = \exp \left[\frac{i}{2} (i - n)(j + m - N - 1)\Delta\omega\Delta t \right]. \quad (\text{A.14})$$

¹ Das Phasenraumvolumen pro Basisfunktion ist für die von Neumann-Darstellung als $\Delta\omega\Delta t = 2\pi$ festgelegt, wodurch sich der Phasenterm, da n, m, i und j ganze Zahlen sind, auf einen einfachen reellen, das Vorzeichen bestimmenden Ausdruck reduziert:

$$\begin{aligned} P_{(n,m),(i,j)} &= \exp [i\pi (i - n)(j + m - N - 1)] \\ &= (-1)^{(i-n)(j+m-N-1)}. \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

Der zweite Exponentialterm kann unter Verwendung von $\Delta\omega = \Omega/F$ und $\Delta t = T/Z$, der Fourier-Beziehung $T = 2\pi N/\Omega$ und schließlich der Definition von $\alpha = TF/(2\Omega Z)$ ebenfalls vereinfacht werden. Dabei ist $N = \Omega T/(2\pi)$ die Zahl der Basisfunktionen in der von Neumann-Ebene die einen Bereich des Phasenraumes mit den Ausmaßen Ω und T abdeckt. Z und F sind die Anzahlen der Basisfunktionen in Zeit- und Frequenzrichtung, deren Produkt wiederum $N = Z \times F$ ist. Man erhält letztendlich eine Formel für die Überlappmatrix, die nur noch von den Indizes der Basisfunktionen abhängt:

$$S_{(n,m),(i,j)} = (-1)^{(i-n)(j+m-N-1)} \exp \left\{ -\frac{\pi}{2} [(i - n)^2 + (j - m)^2] \right\}. \quad (\text{A.16})$$

¹Für $j, m \in [1, N]$. Falls $j, m \in [0, N - 1]$ ergibt sich statt dessen $P_{(n,m),(i,j)} = \exp \left[\frac{i}{2} (i - n)(j + m - N)\Delta\omega\Delta t \right]$

Literaturverzeichnis

- [1] A. H. Zewail.
Femtochemistry: Atomic-scale dynamics of the chemical bond.
J. Phys. Chem. A **104**, 5660–5694 (2000).
- [2] A. H. Zewail.
Femtochemistry. Past, present, and future.
Pure Appl. Chem. **72**, 2219–2231 (2000).
- [3] R. S. Judson and H. Rabitz.
Teaching lasers to control molecules.
Phys. Rev. Lett. **68**, 1500–1503 (1992).
- [4] N. Bloembergen and E. Yablonovitch.
Infrared-laser-induced unimolecular reactions.
Phys. Today **31**, 23–30 (1978).
- [5] A. H. Zewail.
Laser chemistry – Is it possible?
Phys. Today **33**, 27–33 (1980).
- [6] N. Bloembergen and A. H. Zewail.
Energy redistribution in isolated molecules and the question of mode-selective laser chemistry revisited.
J. Phys. Chem. **88**, 5459–5465 (1984).
- [7] T. Elsaesser and W. Kaiser.
Vibrational and vibronic relaxation of large polyatomic molecules in liquids.
Annu. Rev. Phys. Chem. **42**, 83–107 (1991).
- [8] M. Gruebele and R. Bigwood.
Molecular vibrational energy flow: Beyond the golden rule.
Int. Rev. Phys. Chem. **17**, 91–145 (1998).
- [9] D. J. Tannor, R. Kosloff, and S. A. Rice.
Coherent pulse sequence induced control of selectivity of reactions — Exact quantum-mechanical calculations.
J. Chem. Phys. **85**, 5805–5820 (1986).
- [10] D. J. Tannor and S. A. S A Rice.
Coherent pulse sequence control of product formation in chemical reactions.
Adv. Chem. Phys. **70**, 441–523 (1988).

- [11] S. A. Rice and M. Zhao.
Optical Control of Molecular Dynamics.
Wiley, New York (2000).
- [12] D. J. Tannor.
Introduction to Quantum Mechanics A Time-Dependent Perspective.
Palgrave Macmillan (2007).
- [13] T. Baumert, B. Bühler, M. Grosser, R. Thalweiser, V. Weiss,
E. Wiedenmann, and G. Gerber.
*Femtosecond time-resolved wave packet motion in molecular multiphoton
ionization and fragmentation*.
J. Phys. Chem. **95**, 8103–8110 (1991).
- [14] T. Baumert, M. Grosser, R. Thalweiser, and G. Gerber.
*Femtosecond time-resolved molecular multiphoton ionization: The Na₂
system*.
Phys. Rev. Lett. **67**, 3753–3756 (1991).
- [15] T. Baumert and G. Gerber.
*Fundamental interactions of molecules (Na₂, Na₃) with intense femtosecond
laser pulses*.
Isr. J. Chem. **34**, 103–114 (1994).
- [16] E. D. Potter, J. L. Herek, S. Pedersen, O. Liu, and A. H. Zewail.
Femtosecond laser control of a chemical reaction.
Nature **355**, 66–68 (1992).
- [17] P. Brumer and M. Shapiro.
Control of unimolecular reactions using coherent light.
Chem. Phys. Lett. **126**, 541–546 (1986).
- [18] M. Shapiro, J. W. Hepburn, and P. Brumer.
*Simplified laser control of unimolecular reactions: Simultaneous (ω_1, ω_3)
excitation*.
Chem. Phys. Lett. **149**, 451–454 (1988).
- [19] P. Brumer and M. Shapiro.
Laser control of chemical reactions.
Scientific American **272**, 56 (1995).
- [20] M. Shapiro and P. Brumer.
Quantum control of chemical reactions.
J. Chem. Soc. Faraday Transactions **93**, 1263–1277 (1997).
- [21] P. Brumer and M. Shapiro.
Principles of the Quantum Control of Molecular Processes.
Wiley-Interscience, Hoboken, NJ (USA) (2003).
- [22] C. Chen, Y. Yin, and D. S. Elliott.
Interference between optical transitions.
Phys. Rev. Lett. **64**, 507–510 (1990).

- [23] S. M. Park, S. P. Lu, and R. J. Gordon.
Coherent laser control of the resonance-enhanced multiphoton ionization of HCl.
J. Chem. Phys. **94**, 8622–8624 (1991).
- [24] L. C. Zhu, V. D. Kleiman, X. N. Li, S. P. Lu, K. Trentelman, and R. J. Gordon.
Coherent laser control of the product distribution obtained in the photoexcitation of HI.
Science **270**, 77–80 (1995).
- [25] S. Lee.
On the molecular phase in coherent control.
J. Chem. Phys. **107**, 2734–2737 (1997).
- [26] T. Seideman.
The role of a molecular phase in two-pathway excitation schemes.
J. Chem. Phys. **108**, 1915–1923 (1998).
- [27] S. Lee.
Phase lag near the resonances in (ω_1, ω_3) coherent control.
J. Chem. Phys. **108**, 3903–3908 (1998).
- [28] P. H. Bucksbaum.
Photonics: An atomic dimer switch.
Nature **396**, 239–242 (1998).
- [29] D. Meshulach and Y. Silberberg.
Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse.
Nature **396**, 239–242 (1998).
- [30] D. Meshulach and Y. Silberberg.
Coherent quantum control of multiphoton transitions by shaped ultrashort optical pulses.
Phys. Rev. A **60**, 1287–1292 (1999).
- [31] U. Gaubatz, P. Rudecki, M. Becker, S. Schiemann, M. Külz, and K. Bergmann.
Population switching between vibrational levels in molecular beams.
Chem. Phys. Lett. **149**, 463–468 (1988).
- [32] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann, and K. Bergmann.
Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated Raman scattering with partially overlapping laser fields: A new concept and experimental results.
J. Chem. Phys. **92**, 5363–5376 (1990).
- [33] L. S. Pontrjagin.
The mathematical theory of optimal processes.
Interscience Publ., New York (1962).

- [34] M. R. Hestenes.
Calculus of variations and optimal control theory.
Wiley, New York (1966).
- [35] J. Macki and A. Strauss.
Introduction to optimal control theory.
Springer (1995).
- [36] A. Shi, A. Woody, and H. Rabitz.
Optimal control of selective vibrational excitation in harmonic linear chain molecules.
J. Chem. Phys. **88**, 6870–6883 (1988).
- [37] A. P. Peirce, M. Dahleh, and H. Rabitz.
Optimal control of quantum-mechanical systems: Existence, numerical approximation, and applications.
Phys. Rev. A **37**, 4950–4964 (1988).
- [38] R. Kosloff, S. A. Rice, P. Gaspard, S. Tersigni, and D. J. Tannor.
Wavepacket Dancing - Achieving Chemical Selectivity By Shaping Light-Pulses.
Chem. Phys. **139**, 201–220 (December 1989).
- [39] S. P. Shah and S. A. Rice.
A test of the dependence of an optimal control field on the number of molecular degrees of freedom: HCN isomerization.
J. Chem. Phys. **113**, 6536–6541 (2000).
- [40] P. Nuernberger, G. Vogt, T. Brixner, and G. Gerber.
Femtosecond quantum control of molecular dynamics in the condensed phase.
Phys. Chem. Chem. Phys. **9**, 2470–2497 (2007).
- [41] T. Pfeifer, C. Spielmann, and G. Gerber.
Femtosecond X-ray science.
Rep. Prog. Phys. **69**, 443–505 (2006).
- [42] M. Wollenhaupt, V. Engel, and T. Baumert.
Femtosecond laser photoelectron spectroscopy on atoms and small molecules: Prototype studies in quantum control.
Annu. Rev. Phys. Chem. **56**, 25–56 (2005).
- [43] R. E. Carley, E. Heesel, and H. H. Fielding.
Femtosecond lasers in gas phase chemistry.
Chem. Soc. Rev. **34**, 949–969 (2005).
- [44] T. Brixner and G. Gerber.
Quantum control of gas-phase and liquid-phase femtochemistry.
Chem. Phys. Chem. **4**, 418–438 (2003).
- [45] D. Goswami.
Optical pulse shaping approaches to coherent control.
Phys. Rep. **274**, 285–481 (2003).

- [46] T. Brixner, G. Krampert, P. Niklaus, and G. Gerber.
Femtosecond learning control of quantum dynamics in gases and liquids: Technology and applications.
J. Mod. Opt. **50**, 539–560 (2003).
- [47] H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus, and K. Kompa.
Chemistry—Whither the future of controlling quantum phenomena?
Science **288**, 824–828 (2000).
- [48] D. Yelin, D. Meshulach, and Y. Silberberg.
Adaptive femtosecond pulse compression.
Opt. Lett. **22**, 1793–1795 (1997).
- [49] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber.
Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback.
Appl. Phys. B **65**, 779–782 (1997).
- [50] T. Brixner, M. Strehle, and G. Gerber.
Feedback-controlled optimization of amplified femtosecond laser pulses.
Appl. Phys. B **68**, 281–284 (1999).
- [51] T. Brixner, A. Oehrlein, M. Strehle, and G. Gerber.
Feedback-controlled femtosecond pulse shaping.
Appl. Phys. B **68**, 281–284 (2000).
- [52] D. Zeidler, T. Hornung, D. Proch, and M. Motzkus.
Adaptive compression of tunable pulses from a non-collinear-type OPA to below 16 fs by feedback-controlled pulse shaping.
Appl. Phys **70**, S125–S131 (2000).
- [53] E. Zeek, K. Maginnis, S. Backus, U. Russek, M. Murnane, G. Mourou, H. C. Kapteyn, and G. Vdovin.
Pulse compression by use of deformable mirrors.
Opt. Lett. **24**, 493–495 (1999).
- [54] B. J. Pearson, J. L. White, T. C. Weinacht, and P. H. Bucksbaum.
Coherent control using adaptive learning algorithms.
Phys. Rev. A **6306**, 063412 (June 2001).
- [55] T. C. Weinacht and P. H. Bucksbaum.
Using feedback for coherent control of quantum systems.
J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt. **4**, R35–R52 (June 2002).
- [56] F. L. Légaré, J. M. Fraser, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum.
Adaptive compression of intense 250-nm-bandwidth laser pulses.
Appl. Phys. B **74**, S279–S282 (2002).
- [57] T. Pfeifer, U. Weichmann, S. Zipfel, and G. Gerber.
Compression and shaping of a self-phase-modulated laser pulse with a deformable mirror device.
J. Mod. Opt. **50**, 705–710 (2003).

- [58] V. V. Lozovoy, I. Pastirk, and M. Dantus.
Multiphoton intrapulse interference. IV. Ultrashort laser pulse spectral phase characterization and compensation.
Opt. Lett. **29**, 775–777 (2004).
- [59] K.-H. Hong and C. H. Nam.
Adaptive pulse compression of femtosecond laser pulses using a low-loss pulse shaper.
Jap. J. Appl. Phys. **43**, 5289–5293 (2004).
- [60] T. Brixner, G. Krampert, P. Niklaus, and G. Gerber.
Adaptive shaping of femtosecond polarization profiles.
J. Opt. Soc. Am. B **20**, 878–881 (1993).
- [61] T. Suzuki, S. Minemoto, and H. Sakai.
Nontrivial polarization shaping of femtosecond laser pulses by reference to the results of dual-channel spectral interferometry.
Appl. Opt. **43**, 6047–6050 (2004).
- [62] G. Heck, J. Sloss, and R. J. Levis.
Adaptive control of the spatial shaping of coherent soft x-rays.
Opt. Comm. **259**, 216–222 (2005).
- [63] M. Y. Shverdin, S. N. Goda, G. Y. Yin, and S. E. Harris.
Coherent control of laser-induced breakdown.
Opt. Lett. **31**, 1331–1333 (2006).
- [64] R. Ackermann, E. Salmon, N. Lascoux, J. Kasparian, P. Rohwetter, K. Stelmazczyk, S. Li, A. Lindinger, L. Wöste, P. B ejot, L. Bonacina, and J.-P. Wolf.
Optimal control of filamentation in air.
Appl. Phys. Lett. **89**, 171117 (2006).
- [65] T. Pfeifer, L. Gallmann, M. J. Abel, D. M. Neumark, and S. R. Leone.
Circular phase mask for control and stabilization of single optical filaments.
Opt. Lett. **31**, 2326–2328 (2006).
- [66] R. Bartels, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I. P. Christov, M. M. Mournane, and H. C. Kapteyn.
Shaped-pulse optimization of coherent emission of high-harmonic soft X-rays.
Nature **406**, 164–166 (2000).
- [67] D. H. Reitze, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn.
Enhancement of high-order harmonic generation at tuned wavelengths through adaptive control.
Opt. Lett. **29**, 86–88 (2004).
- [68] D. Yoshitomi, J. Nees, N. Miymoto, T. Sekikawa, T. Kanai, G. Mourou, and S. Watanabe.
Phase-matched enhancements of high-harmonic soft X-rays by adaptive wave-front control with a genetic algorithm.

- Appl. Phys. B **78**, 275–280 (2004).
- [69] T. Pfeifer, D. Walter, C. Winterfeldt, C. Spielmann, and G. Gerber.
Controlling the spectral shape of coherent soft X-rays.
Appl. Phys. B **80**, 277–2080 (2005).
- [70] T. Pfeifer, R. Kemmer, R. Spitzenpfeil, D. Walter, C. Winterfeldt,
G. Gerber, and C. Spielmann.
Spatial control of high-harmonic generation in hollow fibers.
Opt. Lett. **30**, 1497–1499 (2005).
- [71] M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, F. J. García de Abajo,
W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Spindler, and F. Steeb.
Adaptive subwavelength control of nano-optical fields.
Nature **446**, 301–304 (2007).
- [72] T. Brixner, B. Kiefer, and G. Gerber.
Problem complexity in femtosecond quantum control.
Chem. Phys. **267**, 241–246 (2001).
- [73] 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 **282**, 919–922 (1998).
- [74] M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, M. Strehle, and G. Gerber.
Controlling the femtochemistry of $Fe(CO)_5$.
J. Phys. Chem. A **103**, 10381–10387 (1999).
- [75] M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, M. Strehle, and G. Gerber.
Adaptive femtosecond pulse shaping and control of molecular femtochemistry.
Nonlin. Optics **24**, 181–186 (2000).
- [76] M. Bergt, T. Brixner, C. Dietl, B. Kiefer, and G. Gerber.
*Time-resolved organometallic photochemistry: Femtosecond fragmentation
and adaptive control of $CpFe(CO)_2X$ ($X=Cl, Br, I$).*
J. Organomet. Chem. **661**, 199–209 (2002).
- [77] N. H. Damrauer, C. Dietl, G. Krampert, S.-H. Lee, K.-H. Jung, and
G. Gerber.
*Control of bond-selective photochemistry in $CH_2 BrCl$ using adaptive
femtosecond pulse shaping.*
Eur. Phys. J. D **20**, 71–76 (2002).
- [78] C. Daniel, J. Full, L. González, C. Lupulescu, J. Manz, A. Merli, Š. Vajda,
and L. Wöste.
Deciphering the reaction dynamics underlying optimal control laser fields.
Science **299**, 536–539 (2003).
- [79] D. Cardoza, F. Langhojer, C. Trallero-Herrero, O. L. A. Monti, and
T. Weinacht.

- Changing pulse-shape basis for molecular learning control.*
Phys. Rev. A **70**, 053406 (2004).
- [80] D. Cardoza, M. Baertschy, and T. Weinacht.
Understanding learning control of molecular fragmentation.
Chem. Phys. Lett. **411**, 311–315 (2005).
- [81] T. Pfeifer, R. Spitzenpfeil, D. Walter, C. Winterfeldt, F. Dimler, G. Gerber, and C. Spielmann.
Towards optimal control with shaped soft-X-ray light.
Opt. Express **15**, 3409–3416 (2007).
- [82] T. C. Weinacht, J. Ahn, and P. H. Bucksbaum.
Controlling the shape of a quantum wavefunction.
Nature **397**, 233–235 (1999).
- [83] T. Hornung, R. Meier, D. Zeidler, K. L. Kompa, D. Proch, and M. Motzkus.
Optimal control of one- and two-photon transitions with shaped femtosecond pulses and feedback.
Appl. Phys. B **71**, 277–284 (2000).
- [84] T. Hornung, R. Meier, and M. Motzkus.
Optimal control of molecular states in a learning loop with a parameterization in frequency and time domain.
Chem. Phys. Lett. **326**, 445–453 (2000).
- [85] C. Trallero-Herrero and T. Weinacht.
Transition from weak- to strong-field coherent control.
Phys. Rev. A **75**, 063401 (2007).
- [86] C. Trallero-Herrero, J. L. Cohen, and T. Weinacht.
Strong-field atomic phase matching.
Phys. Rev. Lett. **96**, 063603 (2006).
- [87] E. Papastathopoulos, M. Strehle, and G. Gerber.
Optimal control of femtosecond multiphoton double ionization of atomic calcium.
Chem. Phys. Lett. **408**, 65–70 (2005).
- [88] T. Brixner, G. Krampert, T. Pfeifer, R. Selle, G. Gerber, M. Wollenhaupt, O. Graefe, C. Horn, D. Liese, and T. Baumert.
Quantum control by ultrafast polarization shaping.
Phys. Rev. Lett. **92**, 208301 (2004).
- [89] T. Suzuki, S. Kanai, Minemoto, T, and H. Sakai.
Optimal control of multiphoton ionization processes in aligned I_2 molecules with time-dependent polarization pulses.
Phys. Rev. Lett. **92**, 133005 (2004).
- [90] A. Lindinger, C. Lupulescu, M. Plewicky, F. Vetter, A. Merli, S. M. Weber, and L. Wöste.
Isotope selective ionization by optimal control using shaped femtosecond laser pulses.

- Phys. Rev. Lett. **93**, 033001 (2004).
- [91] A. Lindinger, F. Vetter, C. Lupulescu, M. Plewicki, S. M. Weber, A. Merli, and L. Wöste.
Selective ionization via different electronic pathways by optimal control demonstrated for $^{23}\text{Na}^{39}\text{K}/^{23}\text{Na}^{41}\text{K}$.
Chem. Phys. Lett. **397**, 123–127 (2004).
- [92] F. Vetter, M. Plewicki, A. Lindinger, A. Merli, S. M. Weber, and L. Wöste.
Optimized isotope-selective ionization of $^{23}\text{Na}^{39}\text{K}$ and $^{23}\text{Na}^{41}\text{K}$ by applying evolutionary strategies.
Phys. Chem. Chem. Phys. **7**, 1151–1156 (2005).
- [93] A. Lindinger, A. Merli, M. Plewicki, F. Vetter, S. M. Weber, and L. Wöste.
Optimal control of isotope selective fragmentation.
Chem. Phys. Lett. **413**, 315–320 (2005).
- [94] B. Schäfer-Bung, V. Bonačić-Koutecký, F. Sauer, S. M. Weber, L. Wöste, and A. Lindinger.
Isotope selective photoionization of NaK by optimal control: Theory and experiment.
J. Chem. Phys. **125**, 214310 (2006).
- [95] M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, and T. Baumert.
Strong field quantum control by selective population of dressed states.
J. Opt. B **7**, S270–S276 (2005).
- [96] N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg.
Quantum control of the angular momentum distribution in multiphoton absorption processes.
Phys. Rev. Lett. **92**, 103003 (2004).
- [97] C. Horn, M. Wollenhaupt, M. Krug, T. Baumert, R. de Nalda, and L. Bañares.
Adaptive control of molecular alignment.
Phys. Rev. A **73**, 031401 (2006).
- [98] T. C. Weinacht, R. Bartels, S. Backus, P. H. Bucksbaum, B. Pearson, J. M. Geremia, H. Rabitz, H. C. Kapteyn, and M. M. Murnane.
Coherent learning control of vibrational motion in room temperature molecular gases.
Chem. Phys. Lett. **344**, 333–338 (2001).
- [99] C. J. Bardeen, V. V. Yakovlev, K. R. Wilson, S. D. Carpenter, P. M. Weber, and W. S. Warren.
Feedback quantum control of molecular electronic population transfer.
Chem. Phys. Lett. **280**, 151–158 (1997).
- [100] S. H. Lee, K. H. Jung, J. H. Sung, K. H. Hong, and C. H. Nam.
Adaptive quantum control of DCM fluorescence in the liquid phase.
J. Chem. Phys. **117**, 9858–9861 (2002).

- [101] T. Brixner, N. H. Damrauer, B. Kiefer, and G. Gerber.
Liquid-phase adaptive femtosecond quantum control: Removing intrinsic intensity dependencies.
J. Chem. Phys. **118**, 3692–3701 (February 2003).
- [102] T. Okada, I. Otake, R. Mizoguchi, K. Onda, S. S. Kano, and A. Wada.
Optical control of two-photon excitation efficiency of α -perylene crystal by pulse shaping.
J. Chem. Phys. **121**, 6386–6391 (2004).
- [103] S. Zhang, Z. Sun, X. Zhang, Y. Xu, Z. Wang, Z. Xu, and R. Li.
Optimal feedback control of two-photon fluorescence in Coumarin 515 based on genetic algorithm.
Chem. Phys. Lett. **415**, 346–350 (2005).
- [104] O. Nahmias, O. Bismuth, A. Shoshana, and S. Ruhman.
Tracking excited state dynamics with coherent control: automated limiting of population transfer in LDS750.
J. Phys. Chem. A **109**, 8246–8253 (2005).
- [105] V. I. Prokhorenko, A. M. Nagy, and R. J. D. Miller.
Coherent control of the population transfer in complex solvated molecules at weak excitation. An experimental study.
J. Chem. Phys. **122**, 184502 (2005).
- [106] I. Otake, S. S. Kano, and A. Wada.
Pulse shaping effect on two-photon excitation efficiency of α -perylene crystals and perylene in chloroform solution.
J. Chem. Phys. **121**, 6386–6391 (2004).
- [107] T. C. Weinacht, J. L. White, and P. H. Bucksbaum.
Toward strong field mode-selective chemistry.
J. Phys. Chem. A **103**, 10166–10168 (1999).
- [108] D. Zeidler, S. Frey, W. Wohlleben, M. Motzkus, F. Busch, T. Chen, W. Kiefer, and A. Materny.
Optimal control of ground-state dynamics in polymers.
J. Chem. Phys. **116**, 5231–5235 (2002).
- [109] J. Konradi, A. K. Singh, and A. Materny.
Mode-focusing in molecules by feedback-controlled shaping of femtosecond laser pulses.
Phys. Chem. Chem. Phys. **7**, 3574–3579 (2005).
- [110] J. Konradi, A. K. Singh, and A. Materny.
Selective excitation of molecular modes in a mixture by optimal control of electronically nonresonant femtosecond four-wave mixing spectroscopy.
J. Photochem. Photobiol. A: **180**, 289–299 (2006).
- [111] J. Konradi, A. K. Singh, A. V. Scaria, and A. Materny.
Selective spectral filtering of molecular modes of β -carotene in solution using optimal control in four-wave-mixing spectroscopy.

- J. Raman Spectrosc. **37**, 697–704 (2006).
- [112] T. Brixner, N. H. Damrauer, P. Niklaus, and G. Gerber.
Photoselective adaptive femtosecond quantum control in the liquid phase.
Nature **414**, 57–60 (2001).
- [113] G. Vogt, G. Krampert, P. Niklaus, P. Nuernberger, and G. Gerber.
Optimal control of photoisomerization.
Phys. Rev. Lett. **94**, 068305 (2005).
- [114] E. C. Carroll, B. J. Pearson, A. C. Florean, P. H. Bucksbaum, and R. J. Sension.
Spectral phase effects on nonlinear resonant photochemistry of 1,3-cyclohexadiene in solution.
J. Chem. Phys. **124**, 114506 (2006).
- [115] V. Prokhorenko, A. M. Nagy, S. A. Waschuk, L. S. Brown, R. R. Birge, and R. J. D. Miller.
Coherent control of retinal isomerization in bacteriorhodopsin.
Science **313**, 1257–1261 (2006).
- [116] B. Dietzek, B. Brüggemann, T. Pascher, and A. Yartsev.
Mechanisms of molecular response in the optimal control of photoisomerization.
Phys. Rev. Lett. **97**, 258301 (2006).
- [117] G. Vogt, P. Nuernberger, T. Brixner, and G. Gerber.
Femtosecond pump – shaped-dump quantum control of retinal isomerization in bacteriorhodopsin.
Chem. Phys. Lett. **433**, 211–215 (2006).
- [118] J. L. Herek, W. Wohlleben, R. J. Cogdell, D. Zeidler, and M. Motzkus.
Quantum control of energy flow in light harvesting.
Nature **417**, 533–535 (2002).
- [119] H. Kawano, Y. Nabekawa, A. Suda, Y. Oishi, H. Mizuno, A. Miyawaki, and K. Midorikawa.
Attenuation of photobleaching in two-photon excitation fluorescence from green fluorescent protein with shaped excitation pulses.
Biochem. Biophys. Research Commun. **311**, 592 (2003).
- [120] J. Chen, H. Kawano, Y. Nabekawa, H. Mizuno, A. Miyawaki, T. Tanabe, F. Kannari, and K. Midorikawa.
Selective excitation between two-photon and three-photon fluorescence with engineered cost functions.
Opt. Express **15**, 3408 (2004).
- [121] Z.-M. Lu and H. Rabitz.
Tracking of temporal molecular data: A direct inversion algorithm for recovering potential energy and dipole functions.
Phys. Rev. A **52**, 1961–1967 (1995).

- [122] Z.-M. Lu and H. Rabitz.
Unified Formulation for Control and Inversion of Molecular Dynamics.
J. Phys. Chem. **99**, 13731–13735 (1995).
- [123] B. Amstrup, G. J. Tóth, G. Szabó, H. Rabitz, and A. Lőrincz.
Genetic Algorithm With Migration On Topology Conserving Maps For Optimal-Control of Quantum-Systems.
J. Phys. Chem. **99**, 5206–5213 (April 1995).
- [124] W. S. Zhu and H. Rabitz.
Potential surfaces from the inversion of time dependent probability density data.
J. Chem. Phys. **111**, 472–480 (1999).
- [125] P. Gross, H. Singh, H. Rabitz, K. Mease, and G. M. Huang.
Inverse quantum-mechanical control: A means for design and a test of intuition.
Phys. Rev. A **47**, 4593–4604 (1993).
- [126] M. Q. Phan and H. Rabitz.
A self-guided algorithm for learning control of quantum-mechanical systems.
J. Chem. Phys. **110**, 34–41 (1999).
- [127] M. Q. Phan and H. Rabitz.
Learning control of quantum-mechanical systems by laboratory identification of effective input-output maps.
Chem. Phys. **217**, 389–400 (1997).
- [128] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff.
Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis.
Science **288**, 635–639 (April 2000).
- [129] G. G. Paulus, F. Lindner, H. Walther, A. Baltuska, E. Goulielmakis, M. Lezius, and F. Krausz.
Measurement of the phase of few-cycle laser pulses.
Phys. Rev. Lett. **91**, 253004 (December 2003).
- [130] M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. De Silvestri, C. Vozzi, M. Pascolini, L. Poletto, P. Villoresi, and G. Tondello.
Effects of carrier-envelope phase differences of few-optical-cycle light pulses in single-shot high-order-harmonic spectra.
Phys. Rev. Lett. **91**, 213905 (November 2003).
- [131] J. C. Diels and W. Rudolph.
Ultrashort Laser Pulse Phenomena.
Academic Press, London (1996).
- [132] R. Trebino.
Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Pulses.
Kluwer Academic Publishers, Norwell, Ma (USA) (2000).

- [133] J.-C. Diels, J. J. Fontaine, I. C. McMichael, and F. Simoni.
Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy.
Appl. Opt. **24**, 1270–1282 (1985).
- [134] V. Seyfried.
Beobachtung und Kontrolle molekularer Dynamik durch Femtosekundenlaserimpulse.
Ph.D. thesis, Universität Würzburg (1998).
- [135] P. Nuernberger.
Formung und Charakterisierung von Femtosekunden-Laserimpulsen im Ultravioletten.
Diplomarbeit, Universität Würzburg (2004).
- [136] R. Koenig, H. K. Dunn, and L. Y. Lacy.
The sound spectrograph.
J. Acoust. Soc. Am. **18**, 19–49 (1946).
- [137] J. B. Allen and L. R. Rabiner.
A unified approach to short-time Fourier analysis and synthesis.
Proc. IEEE **65**, 1558–1564 (1977).
- [138] R. Altes.
Detection, estimation and classification with spectrograms.
J. Acoust. Soc. Am. **67**, 1232–1246 (1980).
- [139] C. E. Heil and D. F. Walnut.
Continuous and discrete wavelet transforms.
SIAM Review **31**, 628–666 (1989).
- [140] C. Hirlimann and J. G. Morhange.
Wavelet analysis of short light pulses.
Appl. Opt. **31**, 3263–3266 (1992).
- [141] G. Gabor.
Theory of communication.
J. IEEE **93**, 429–457 (1946).
- [142] L. Cohen.
Time Frequency-Distributions - A Review.
Proc. IEEE **77**, 941–981 (1989).
- [143] H.-W. Lee.
Theory and Application of the Quantum Phase-Space Distribution Functions.
Phys. Rep. **259**, 147–211 (1995).
- [144] M. Man’ko.
Linear and nonlinear optical signals in probability and phase-space representations.
J. Phys.: Conf. Series **36**, 126–136 (2006).

- [145] E. Wigner.
On the Quantum Correction For Thermodynamic Equilibrium.
Phys. Rev. **40**, 749–759 (1932).
- [146] W. P. Schleich.
Quantum Optics in Phase Space.
Wiley-VCH (2001).
- [147] M. O. Scully and M. S. Zubairy.
Quantum Optics.
Cambridge University Press, Cambridge (1995).
- [148] H. O. Bartelt, K.-H. Brenner, and A. W. Lohmann.
The Wigner distribution function and its optical production.
Opt. Comm. **32**, 32–38 (1980).
- [149] K.-H. Brenner and Wódkiewicz.
The time-dependent physical spectrum of light and the wigner distribution function.
Opt. Comm. **43**, 103–106 (1982).
- [150] S. Mukamel, C. Ciordas-Ciurdariu, and V. Khidekel.
Wigner spectrograms for femtosecond pulse-shaped heterodyne and autocorrelation measurements.
IEEE J. Quantum Electron. **32**, 1278–1288 (August 1996).
- [151] R. Gase.
Ultrashort-pulse measurements applying generalized time-frequency distribution functions.
J. Opt. Soc. Am. B **1997**, 2915–2920 (14).
- [152] J. Paye.
The Chronocyclic Representation of Ultrashort Light Pulses.
IEEE J. Quantum Electron. **28**, 2262–2272 (1992).
- [153] D. M. Appleby.
Generalized Husimi functions: Analyticity and information content.
J. Mod. Opt. **46**, 825–841 (1999).
- [154] A. M. F. Rivas, E. G. Vergini, and D. A. Wisniacki.
Smoothed Wigner functions: A tool to resolve semiclassical structures.
Eur. Phys. D **32**, 355–359 (2005).
- [155] K. Husimi.
Some Formal Properties of the Density Matrix.
Proc. Phys. Math. Soc. Jpn. **22**, 264 (1940).
- [156] D. Lalović, D. M. Davidović, and N. Bijedić.
Quantum mechanics in terms of non negative smoothed Wigner functions.
Phys. Rev. A **46**, 1206–1212 (1992).
- [157] H.-W. Lee.
Generalized antinormal ordered quantum phase-space distribution functions.

- Phys. Rev. A **50**, 2746–2749 (1994).
- [158] R. F. O’Connell and E. P. Wigner.
Some properties of a non-negative quantum-mechanical distribution function.
Phys. Lett. A **85**, 121–126 (1981).
- [159] M. A. M. de Aguiar and A. M. O. de Almeida.
On the probability density interpretation of smoothed Wigner function.
Journal Of Physics A-Mathematical And General **23**, 1025–1031 (May 1990).
- [160] J. von Neumann.
Die Eindeutigkeit der Schrödingerschen Operatoren.
Math. Ann. **104**, 570 (1931).
- [161] A. M. Perelomov.
On the Completeness of a System of Coherent States.
Theor. Math. Phys. **11**, 156 (1971).
- [162] S. S. Mizrahi.
Quantum mechanics in the Gaussian wave-packet phase space representation.
Physica A **127**, 241–264 (1984).
- [163] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett.
60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser.
Opt. Lett. **16**, 42–44 (1991).
- [164] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou.
Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification.
IEEE J. Quantum Electron. **24**, 398–403 (1988).
- [165] G. Cheriaux, P. Rousseau, F. Salin, J. P. Chambaret, B. Walker, and L. F. Dimauro.
Aberration-free stretcher design for ultrashort-pulse amplification.
Opt. Lett. **21**, 414–416 (1996).
- [166] I. Walmsley, L. Waxer, and C. Dorrer.
The role of dispersion in ultrafast optics.
Rev. Sci. Instrum. **72**, 1–29 (2001).
- [167] E. B. Treacy.
Optical pulse compression with diffraction gratings.
IEEE J. Quantum Electron. **5**, 454–458 (1969).
- [168] K. Naganuma, K. Mogi, and H. Yamada.
Time direction determination of asymmetric ultrashort optical pulses from second-harmonic generation autocorrelation signals.
Appl. Phys. Lett. **54**, 1201–1202 (1989).
- [169] J. Peatross and A. Rundquist.
Temporal decorrelation of short laser pulses.
J. Opt. Soc. Am. B **15**, 216–222 (1998).
- [170] K.-H. Hong, Y. S. Lee, and C. H. Nam.

- Electric field reconstruction of femtosecond laser pulses from interferometric autocorrelation using an evolutionary algorithm.*
Opt. Comm. **271**, 169–177 (2007).
- [171] C. J.-H. and A. M. Weiner.
Ambiguity of ultrashort pulse shapes retrieved from the intensity autocorrelation and the power spectrum.
IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **7**, 656–666 (2001).
- [172] J. Paye, M. Ramaswamy, J. G. Fujimoto, and E. P. Ippen.
Measurement of the amplitude and phase of ultrashort light pulses from spectrally resolved autocorrelation.
Opt. Lett. **18**, 1946–1948 (1993).
- [173] K. W. DeLong, R. Trebino, J. Hunter, and W. E. White.
Frequency-resolved optical gating with the use of second harmonic generation.
J. Opt. Soc. Am. B **11**, 2206–2215 (1994).
- [174] 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.
Rev. Sci. Instrum. **68**, 3277–3295 (1997).
- [175] J. R. Fienup.
Phase retrieval algorithms: A comparison.
Appl. Opt. **21**, 2758–2769 (1982).
- [176] K. W. DeLong and R. Trebino.
Improved ultrashort pulse-retrieval algorithm for frequency-resolved optical gating.
J. Opt. Soc. Am A **11**, 2429–2437 (1994).
- [177] K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, R. Trebino, B. Kohler, and K. Wilson.
Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections.
Opt. Lett. **19**, 2152–2154 (1994).
- [178] D. Keusters, H.-S. Tan, P. O’Shea, E. Zeek, R. Trebino, and W. Warren.
Relative-phase ambiguities in measurements of ultrashort pulses with well-separated multiple frequency components.
J. Opt. Soc. Am. B **20**, 2226–2237 (2003).
- [179] B. Seifert, H. Stolz, and M. Tasche.
Nontrivial ambiguities for blind frequency-resolved optical gating and the problem of uniqueness.
J. Opt. Soc. Am. B **21**, 1089–1097 (2004).
- [180] S. Linden, H. Giessen, and J. Kuhl.
XFROG – A New Method for Amplitude and Phase Characterization of Weak Ultrashort Pulses.
Phys. Stat. Sol. B **206**, 119–124 (1998).

- [181] S. Linden, J. Kuhl, and H. Giessen.
Amplitude and phase characterization of weak blue ultrashort pulses by downconversion.
Opt. Lett. **24**, 569–571 (1999).
- [182] J. Piasecki, B. Colombeau, M. Vampouille, C. Froehly, and J. A. Arnaud.
Nouvelle méthode de mesure de la réponse impulsionnelle des fibres optiques.
Appl. Opt. **19**, 3749 (1980).
- [183] C. Froehly, A. Lacourt, and J. C. Vienot.
Notions de réponse impulsionnelle et de fonction de transfert temporelles des pupilles optiques, justifications expérimentales et applications.
J. Opt. (Paris) **4**, 183 (1973).
- [184] L. Lepetit, G. Chériaux, and M. Joffre.
Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy.
J. Opt. Soc. Am. B **12**, 2467–2474 (1995).
- [185] D. N. Fittinghoff, J. L. Bowie, J. N. Sweetser, R. T. Jennings, M. A. Krumbügel, K. W. DeLong, and R. Trebino.
Measurement of the intensity and phase of ultrashort laser pulses.
Opt. Lett. **22**, 81–83 (1996).
- [186] W. J. Walecki, D. N. Fittinghoff, A. L. Smirl, and R. Trebino.
Characterization of the polarization state of weak ultrashort coherent signals by dual channel spectral interferometry.
Opt. Lett. **22**, 81–83 (1996).
- [187] M. A. Weiner.
Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators.
Rev. Sci. Instrum. **71**, 1929–1960 (2000).
- [188] O. E. Martínez.
Grating and prism compressor in the case of finite beam size.
J. Opt. Soc. Am. B **3**, 929–934 (1986).
- [189] T. Binhammer, E. Rittweger, R. Ell, F. X. Kärtner, and U. Morgner.
Prism-based pulse shaper for octave spanning spectra.
IEEE J. Quantum Electron. **41**, 1552–1557 (2005).
- [190] A. M. Weiner, A. E. Leaird, J. S. Patel, and J. R. Wullert.
Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator.
Opt. Lett. **15**, 326–328 (1990).
- [191] A. M. Weiner, D. E. Leaird, A. Patel, and J. R. Wullert.
Programmable shaping of femtosecond optical pulses by use of 128-element liquid-crystal phase modulator.
IEEE J. Quantum Electron. **28**, 908–920 (1992).
- [192] M. M. Wefers and K. A. Nelson.

- Programmable phase and amplitude femtosecond pulse shaping.*
Opt. Lett. **18**, 2032–2034 (1993).
- [193] L. Polachek, D. Oron, and Y. Silberberg.
Full control of the spectral polarization of ultrashort pulses.
Opt. Lett. **31**, 631–633 (2006).
- [194] M. Plewicky, F. Weise, S. M. Weber, and A. Lindinger.
Phase, amplitude, and polarization shaping with a pulse shaper in a Mach-Zehnder interferometer.
Appl. Opt. **45**, 8354–8359 (2006).
- [195] M. Ninck, A. Galler, T. Feurer, and T. Brixner.
Programmable common-path vector field synthesizer for femtosecond pulses.
Opt. Lett. **32**, 3379–3381 (2007).
- [196] M. Plewicky, S. M. Weber, F. Weise, and A. Lindinger.
Independent control over the amplitude, phase, and polarization of femtosecond pulses.
Appl. Phys. B **86**, 259–263 (2007).
- [197] M. A. Hillegas, J. X. Tull, D. Goswami, D. Strickland, and W. S. Warren.
Femtosecond laser pulse shaping by use of microsecond radio-frequency pulses.
Opt. Lett. **19**, 737–739 (1994).
- [198] M. A. Dugan, J. X. Tull, and W. S. Warren.
High-resolution acousto-optic shaping of unamplified and amplified femtosecond laser pulses.
J. Opt. Soc. Am. B **14**, 2348–2358 (1997).
- [199] B. J. Pearson and T. C. Weinacht.
Shaped ultrafast pulses in the deep ultraviolet.
Opt. Comm. **15**, 4385–4388 (2007).
- [200] C. Radzewicz, P. Wasylczyk, W. Wasukewsj, and J. S. Krasiński.
Piezo-driven deformable mirror for femtosecond pulse shaping.
Opt. Lett. **29**, 177–179 (2004).
- [201] A. Baltuška and T. Kobayashi.
Adaptive shaping of two-cycle visible pulses using a flexible mirror.
Appl. Phys. B **75**, 427–443 (2002).
- [202] K. Li, U. Krishnamoorthy, J. P. Heritage, and O. Solgaard.
Coherent micromirror arrays.
Opt. Lett. **27**, 366–368 (2002).
- [203] M. Hacker, G. Strobrawa, R. Sauerbrey, T. Buckup, and M. Motzkus.
Micromirror SLM for femtosecond pulse shaping in the ultraviolet.
Appl. Phys. B **76**, 711–714 (2003).
- [204] A. Suda, Y. Oishi, K. Nagasaka, P. Wang, and K. Midorikawa.

- A spatial light modulator based on fused-silica plates for adaptive feedback control of intense femtosecond laser pulses.*
Opt. Express **9**, 2–6 (2001).
- [205] Y. Oishi, A. Suda, F. Kannari, and K. Midorikawa.
Intense femtosecond pulse shaping using a fused-silica spatial light modulator.
Opt. Comm. **270**, 305–309 (2007).
- [206] P. Collings.
Liquid Crystals.
Second edition. Princeton University Press, Princeton (2001).
- [207] T. Brixner.
Kohärente Kontrolle von Photodissoziationsreaktionen mit optimal geformten ultrakurzen Laserpulsen.
Diplomarbeit, Universität Würzburg (1998).
- [208] C. Brosseau.
Fundamentals of polarized light.
Wiley (1998).
- [209] T. Brixner and G. Gerber.
Femtosecond polarization pulse shaping.
Opt. Lett. **26**, 557–559 (2000).
- [210] T. Brixner.
Adaptive femtosecond quantum control.
Dissertation, Universität Würzburg (2001).
- [211] J. C. Vaughan, T. Feurer, K. W. Stone, and K. A. Nelson.
Analysis of replica pulses in femtosecond pulse shaping with pixelated devices.
Opt. Express **14**, 1314–1328 (2006).
- [212] M. M. Wefers and K. A. Nelson.
Analysis of programmable ultrashort waveform generation using liquid-crystal spatial light modulators.
J. Opt. Soc. Am. B **12**, 1343–1362 (1995).
- [213] P. Nuernberger.
Adaptive Control of Quantum Systems with Femtosecond Laser Pulses.
Dissertation, Universität Würzburg (2007).
- [214] V. Seyfried.
Beobachtung und Kontrolle molekularer Dynamik durch Femtosekundenlaserpulse.
Dissertation, Universität Würzburg (1998).
- [215] J. A. Arns, W. S. Colburn, and S. C. Barden.
Volume phase gratings for spectroscopy, ultrafast laser compressors, and wavelength division multiplexing.
Proc. SPIE **3779**, 313–323 (1999).

- [216] I. K. Baldry, J. Bland-Hawthorn, and J. G. Robertson.
Volume Phase Holographic Gratings: Polarization Properties and Diffraction Efficiency.
Publ. Astron. Soc. Pac. **116**, 403–414 (2004).
- [217] L. D. Dickson, R. D. Rallison, and B. H. Yung.
Holographic polarization-separation elements.
Applied Optics **33**, 5373–5385 (1992).
- [218] S. C. Barden, J. A. Arns, and W. S. Colburn.
Volume-phase holographic gratings and their potential for astronomical applications.
Proceedings SPIE **3355**, 866–876 (1998).
- [219] S. C. Barden, J. A. Arns, and W. S. Colburn.
Astronomical Applications of Volume-Phase Holographic Gratings.
Proceedings SPIE **3749**, 52–53 (1999).
- [220] P. Blanche, P. Gailly, S. Habraken, P. Lemaire, and C. Jamar.
Volume phase holographic gratings: large size and high diffraction efficiency.
Opt. Eng. **43**, 2603–2612 (2004).
- [221] H. Kogelnik.
Coupled wave theory for thick hologram gratings.
Bell System Technical Journal **48**, 2909–2947 (1969).
- [222] New Focus, Inc.
Model 5540 Users's Manual – The Berek Polarization Compensator.
- [223] R. Selle, P. Nuernberger, F. Langhojer, F. Dimler, S. Fechner, G. Gerber, and T. Brixner.
Generation of polarization-shaped ultraviolet femtosecond pulses.
Opt. Lett. **33**, 803–805 (2008).
- [224] J. Paye.
Space-Time Wigner functions and their application to the analysis of a pulse shaper.
J. Opt. Soc. Am. B **12**, 1480–1490 (1995).
- [225] G. Vogt, P. Nuernberger, R. Selle, F. Dimler, T. Brixner, and G. Gerber.
Analysis of femtosecond quantum control mechanisms with colored double pulses.
Phys. Rev. A **74**, 033413 (2006).
- [226] B. Schäfer-Bung, R. Mitrić, V. Bonačić-Koutecký, A. Bartelt, C. Lupulescu, A. Lindinger, V. Vajda, S. M. Weber, and L. Wöste.
Optimal control of ionization processes in NaK: Comparison between theory and experiment.
J. Phys. Chem. A **108**, 4175–4179 (May 2004).
- [227] K.-H. Hong, J.-H. Kim, Y. Kang, and C. Nam.
Time-frequency analysis of chirped femtosecond pulses using Wigner distribution function.

- Appl. Phys. B **74**, 231–236 (2002).
- [228] D. J. Tannor and Y. Jin.
Mode selective Chemistry, chapter Design of Femtosecond Pulse Sequences to Control Photochemical Products, pp. 333–345.
Kluwer Academic Publishers (1991).
- [229] S. Fechner, F. Dimler, T. Brixner, G. Gerber, and D. J. Tannor.
The von Neumann picture: A new representation for ultrashort laser pulses.
Opt. Express **15**, 15387–15401 (2007).
- [230] M. J. Davis and E. J. Heller.
Semiclassical Gaussian basis set method for molecular vibrational wave functions.
J. Chem. Phys. **71**, 3383 (1979).
- [231] M. Boon and J. Zak.
Discrete coherent states on the von Neumann lattice.
Phys. Rev. B **18**, 6744–6751 (1978).
- [232] J. M. Geremia, E. Weiss, and H. Rabitz.
Achieving the laboratory control of quantum dynamics phenomena using nonlinear functional maps.
Chem. Phys. **267**, 209–222 (2001).
- [233] B. Amstrup, G. J. Tóth, H. Rabitz, and A. Lőrincz.
Identification of Born–Oppenheimer potential-energy surfaces of diatomic-molecules from optimized chirped pulses.
Chem. Phys. **201**, 95–105 (1995).
- [234] H. Rabitz and W. S. Zhu.
Optimal control of molecular motion: Design, implementation, and inversion.
Acc. Chem. Res. **33**, 572–578 (2000).
- [235] M. Sukharev, E. Charron, and A. Suzor-Weiner.
Quantum control of double ionization of calcium.
Phys. Rev. A **66**, 053407 (2002).
- [236] M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, and T. Baumert.
Quantum control and quantum control landscapes using intense shaped femtosecond pulses.
J. Mod. Opt. **52**, 2187–2195 (2005).
- [237] J. Roslund, M. Roth, and H. Rabitz.
Laboratory observation of quantum control sets.
Phys. Rev. A **74**, 043414 (2006).
- [238] M. Wollenhaupt, D. Liese, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, and T. Baumert.
Quantum control by ultrafast dressed states tailoring.
Chem. Phys. Lett. **419**, 184–190 (2006).
- [239] B. von Vacano and M. Motzkus.

- Time-resolved two color single-beam CARS employing supercontinuum and femtosecond pulse shaping.*
Opt. Commun. **264**, 488–493 (2006).
- [240] A. F. Bartelt, T. Feurer, and L. Wöste.
Understanding optimal control results by reducing the complexity.
Chem. Phys. **318**, 207–216 (2005).
- [241] F. Langhojer, D. Cardoza, M. Baertschy, and T. Weinacht.
Gaining mechanistic insight from closed loop learning control: The importance of basis in searching the phase space.
J. Chem. Phys. **122**, 014102 (2005).
- [242] D. Zeidler, S. Frey, K. L. Kompa, and M. Motzkus.
Evolutionary algorithms and their application to optimal control studies.
Phys. Rev. A **64**, 023420 (2001).
- [243] D. Cardoza, C. Trallero-Herrero, F. L. H. Rabitz, and T. Weinacht.
Transformations to diagonal bases in closed-loop quantum learning control experiments.
J. Chem. Phys. **122**, 124306 (2005).
- [244] M. Montgomery, R. Meglen, and N. Damrauer.
General Method for the Dimension Reduction of Adaptive Control Experiments.
J. Phys. Chem. A **110**, 6391–6394 (2006).
- [245] J. Cao, C. J. Bardeen, and K. R. Wilson.
Molecular π pulses: Population inversion with positively chirped short pulses.
J. Chem. Phys. **113**, 1898–1908 (2000).
- [246] H. A. Rabitz, M. M. Hsieh, and C. M. Rosenthal.
Quantum optimally controlled transition landscapes.
Science **303**, 1998–2001 (2004).
- [247] T.-S. Ho and H. Rabitz.
Why do effective quantum controls appear easy to find?
J. Photochem. Photobiol. A **180**, 226–240 (2006).
- [248] A. Rothman, T.-S. Ho, and H. A. Rabitz.
Exploring the level sets of quantum control landscapes.
Phys. Rev. A **73**, 053401 (2006).
- [249] H. Rabitz, M. Hsieh, and C. Rosenthal.
Optimal control landscapes for quantum observables.
J. Chem. Phys. **124**, 204107 (2006).
- [250] H. Rabitz, T.-S. Ho, M. Hsieh, R. Kosut, and M. Demiralp.
Topology of optimally controlled quantum mechanical transition probability landscapes.
Phys. Rev. A **74**, 012721 (2006).

- [251] A. M. Zheltikov.
Coherent anti-Stokes Raman scattering: from proof-of-the-principle experiments to femtosecond CARS and higher order wave-mixing generalizations.
J. Raman Spec. **31**, 653–667 (2000).
- [252] I. V. Yevseyev.
Polarization photon echo spectroscopy.
Proc. SPIE **1711**, 48 (1993).
- [253] X. Q. Li, S. T. Cundiff, T. H. Zhang, and C. N. Borca.
Optical two-dimensional Fourier transform spectroscopy with active interferometric stabilization.
Opt. Express **13**, 7432–7441 (2005).
- [254] T. Brixner, J. Stenger, H. M. Vaswani, M. Cho, R. E. Blankenship, and G. R. Fleming.
Two-dimensional spectroscopy of electronic couplings in photosynthesis.
Nature **434**, 625–628 (2005).
- [255] T. Brixner, T. Mancal, I. V. Stiopkin, and G. R. Fleming.
Phase-stabilized two-dimensional electronic spectroscopy.
J. Chem. Phys. **121**, 4221–4236 (2004).
- [256] T. Hornung, J. C. Vaughan, T. Feurer, and K. A. Nelson.
Degenerate four-wave mixing spectroscopy based on two-dimensional femtosecond pulse shaping.
Opt. Lett. **29**, 2052–2054 (2004).

Danksagung

Abschließend möchte ich all jenen einen herzlichen Dank aussprechen, die mich während der letzten vier Jahre tatkräftig unterstützt haben und für meine Fragen und Anliegen stets ein offenes Ohr hatten. Die Zeit in der „Experimentellen Physik I“ und dem „Lehrstuhl 1“ des Instituts für Physikalische Chemie wird mir wegen dieses freundlichen und kollegialen Arbeitsklimas immer in positiver Erinnerung bleiben.



Ganz besonderer Dank dafür gebührt:

- Prof. Dr. Gustav Gerber, der es mir durch die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe ermöglicht hat auf diesem spannenden Forschungsgebiet zu arbeiten. Egal, ob es sich um eine Bewerbung auf ein Stipendium, den Besuch anderer Arbeitsgruppen oder die Teilnahme an einer Konferenz und oder einer Sommerschule handelte, ich konnte mir stets seiner Unterstützung sicher sein. Danke.
- Prof. Dr. Tobias Brixner für seine Kompetenz in Fragen der Impulsformung, sein großartiges Engagement in unseren Projekten, sowie seine Unterstützung bei fachlichen und organisatorischen Problemen aller Art.
- Prof. David J. Tannor für seine Hilfe in theoretischen Fragen, seinen Ideenreichtum, seine Gabe zu fruchtbaren Diskussionen und seine Gastfreundlichkeit.
- Dr. Patrick Nürnberger dafür, dass er mir von Anfang an hilfsbereit zur Seite gestanden hat. Ohne sein umfassendes Wissen, seine beeindruckende Literaturkenntnis, seinen Rittersport-Vorrat, seine Bereitschaft zuzuhören und ein Problem zu Ende zu denken wäre diese Arbeit nicht denkbar gewesen.
- Florian Langhojer und Frank Dimler für die Konzeption und Entwicklung der neuen Messprogramme, die mir die Arbeit im Labor wesentlich vereinfacht haben.



- Meinen Mitarbeitern Frank Dimler, Alexander Rodenberg und Stephanie Karg für gemeinsame lange Laborabende, für Ausdauer und Geschick beim Lösen diverser Probleme.
- Den Projektpraktikanten Florin Boariu und Achim Morschhauser, die mit guten Ideen und engagierter Arbeit wesentlich zum Fortschreiten des Projekts beigetragen haben. Sowie Stefan Rützel und Christoph Stolzenberger, die mit ihrer Masterarbeit die Zukunft des von Neumann-Projektes sichern.
- Robert Spitzenpfeil für seinen langjährigen und zuverlässigen Einsatz als Systemadministrator.
- Johannes Buback für seine unermüdliche Suche nach Möglichkeiten zur Verbesserung des Polarimeters, für den köstlichen Marmorkuchen und dafür, dass er mit mir zusammen wacker an der schlechteren Seite des besten Kickers der Welt ausgeharrt hat.
- Björn Giesecking, Frank Dimler, Jochen Aulbach, Patrick Nürnberger, Philipp Rudolf und Stephanie Karg für die muntere Jagd auf fehlende oder überflüssige Kommas, vertauschte Indizes und – in wirklich sehr seltenen Fällen – nicht ganz korrekte Deklinationen.
- Allen noch nicht namentlich genannten Mitarbeitern aus Labor B für interessante Diskussionen, Hilfsbereitschaft bei kleinen und großen Problemen und nicht zu vergessen: Kampfgeist beim ChemCup: Mareike Koch, Gerhard Krampert, Eliza-Beth Lerch, Tatjana Löhrig, Christian Rewitz, Kate Moore, Marco Schade, Reimer Selle, Ulrike Selig, Christian Spindler, Christoph Schwarz, Philip Tuchscherer, Gerhard Vogt, Dmitri Voronine und Daniel Wolpert.
- Den Kollegen aus den Laboren A, S und D, für ihre Hilfsbereitschaft und das gute Arbeitsklima in der EP1.
- Den technischen Assistentinnen der EP1 und PC1, Monika Seifer, Helga Schwark, Belinda Böhm und Sabine Fuchs sowie den Sekretärinnen beider Lehrstühle, Diep Phan und Andrée Meyer, für ihre Hilfe beim Lösen von Problemen aller Art.
- Allen Mitarbeitern der wissenschaftlichen Werkstätten des Physikalischen Instituts und des Instituts für Physikalische Chemie ohne deren Arbeit keines meiner Experimente funktioniert hätte.

- Dem Bayerischen Staatsministerium für Wissenschaft, Forschung und Kunst für die Finanzierung meines Diplomstudiums (Stipendium nach dem Bayerischen Begabtenförderungsgesetz).

- Prof. Marie-Christine Dabauvalle, Gabriele Kersting, Jörgen Hopf, Dr. Peter Antes und der gesamten Studienstiftung des deutschen Volkes für die finanzielle und ideelle Unterstützung während meines Studiums und meiner Promotion, sowie für die Möglichkeit das folgende Jahr am RIKEN-Institut in Japan zu verbringen.

- Der German-Israeli-Foundation für die finanzielle Förderung der Kooperation mit Prof. David J. Tannor.

- Christian Kern für unsere schöne gemeinsame Zeit und die zuverlässige Versorgung mit Schokolade.
- Meinen Lieblingsdiplomanden, Lieblingsexdiplomanden und Lieblingsdoktoranden für geschmackvolle Postkarten, stets gut durchgezogenen Tee, Nahrungs- und Filmimporte, gemeinsames Kickern und interessante Laborbesichtigungen.

- Vielen Dank auch zwei besonderen Menschen, Jutta Ortloff und Daniel Ludwig, die mich nun schon seit acht Jahren kennen, und auf deren Hilfe und Freundschaft ich mich stets verlassen konnte.
- Meinen Eltern Petra und Siegfried Fechner, dafür dass sie mich stets unterstützt und ermutigt haben meinen Interessen nachzugehen. Danke auch dafür, dass diese Interessen schon früh in die „richtige“ Richtung „gelenkt“ wurden 😊.

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name: Susanne Fechner
Wohnort: Zwinger 16, 97070 Würzburg
geboren am: 19. Februar 1981 in Berlin
Staatsangehörigkeit: deutsch
Familienstand: ledig

Schulbildung

09/1987 – 07/1992 116. Polytechnische Oberschule „Rudolf Bergander“ Dresden
09/1992 – 06/1995 Julius-Ambrosius-Hülke-Gymnasium Dresden
09/1995 – 06/2000 Friedrich-Dessauer-Gymnasium Aschaffenburg
30. Juni 2000 Allgemeine Hochschulreife

Studium der Physik

10/2000 – 08/2005 Julius-Maximilians-Universität Würzburg
Diplomarbeit bei Prof. Dr. G. Gerber:
*Aufbau eines Polarisationsimpulsformers
zur kohärenten Kontrolle chemischer Reaktionen*
10. August 2005 Abschluss: Diplom-Physiker
09/2003 – 08/2004 Université Joseph Fourier (Frankreich)
Abschlussarbeit bei Prof. Dr. E. Lacot:
*Absolute measurement of laser frequency-shifted
optical feedback by pump modulation*
09. Juli 2004 Abschluss: Maîtrise de la Physique
seit 08/05 Julius-Maximilians-Universität Würzburg
Promotion bei Prof. Dr. G. Gerber

Stipendien und Auszeichnungen

10/2000 – 08/2005	Stipendium nach dem Bayerischen Begabtenförderungsgesetz (BayBFG)
03/2003 – 08/2005	Förderung durch die Studienstiftung des deutschen Volkes
12. Dezember 2005	Wilhelm Conrad Röntgen-Studienpreis des Physikalischen Instituts der Universität Würzburg
seit 06/2006	Promotionsstipendium der Studienstiftung des deutschen Volkes

Lehrerfahrung an der Universität

2003	Übungsbetreuung zur Vorlesung Mathematik für Ingenieure IV
2003 – 2007	Physikalisches Grundpraktikum
2004 – 2005	Physikalisches Nebenfachpraktikum
2005 – 2006	Physikalisches Fortgeschrittenenpraktikum Teil B