

MO 33 Quantum Control I

Zeit: Montag 14:00–16:00

Raum: HU 2091

Hauptvortrag

MO 33.1 Mo 14:00 HU 2091

Zweidimensionale Spektroskopie elektronischer Kopplungen — •TOBIAS BRIXNER^{1,2}, JENS STENGER², MINHAENG CHO³, HARSHA VASWANI², ROBERT E. BLANKENSHIP⁴ und GRAHAM R. FLEMING² — ¹Physikalisches Institut, Universität Würzburg, Am Hubland, 97074 Würzburg — ²Department of Chemistry, University of California, Berkeley, CA 94720, USA — ³Department of Chemistry, Korea University, Seoul 136-701, Korea — ⁴Department of Chemistry and Biochemistry, Arizona State University, Tempe, AZ 85287, USA

Mit zeitaufgelösten Spektroskopiemethoden detektiert man in der Regel transiente Populationen in quantenmechanischen Systemen. Allerdings können so die Kopplungen zwischen verschiedenen Zuständen, welche ganz allgemein für die beobachteten Zeitentwicklungen verantwortlich sind, nur indirekt erschlossen werden. Mit Hilfe der zweidimensionalen Spektroskopie [1] überwinden wir diese Beschränkung und bestimmen erstmals direkt elektronische Kopplungen in Molekülen, hier speziell in einem natürlich vorkommenden photosynthetischen Lichtsammelkomplex. Die entstehenden frequenz- und zeitabhängigen Energietransportwege nach der Photoanregung werden ebenfalls ermittelt. So erhalten wir ein einfaches Bild davon, wie sich die elektronische Anregung im Protein-Pigment-Komplex räumlich und zeitlich ausbreitet. Mit dieser Methode kann die raum-zeitliche Dynamik in einer Vielzahl von photoaktiven Systemen, Makromolekülen oder Nanostrukturen untersucht werden.

[1] T. Brixner et al., *J. Chem. Phys.* **121**, 4221 (2004).

MO 33.2 Mo 14:30 HU 2091

Selektive Anregung von einzelnen Vibrationszuständen mittels geformten ultrakurzen Impulsen in Vierwellenmischprozessen — •HRVOJE SKENDEROVIĆ^{1,2}, JÜRGEN HAUER^{1,3}, KARL-LUDWIG KOMPA¹ und MARCUS MOTZKUS^{1,3} — ¹Max-Planck-Institut für Quantenoptik, D-85748 Garching — ²Institut für Physik, HR 10000 Zagreb, Kroatien — ³Philipps-Universität, D-35032 Marburg

Wir verwenden zeitaufgelöstes Vierwellenmischen (Degenerate Four Wave Mixing und Coherent anti-Stokes Raman Scattering) mit einer Auflösung von unter 20 fs, um die energetisch hohen Vibrationsmoden des Grundzustandes von Molekülen in Lösung selektiv anzuregen und zu detektieren. Zwei der Impulse werden mit einer Flüssigkristallmaske (640 Pixel) in einem 4f-Aufbau durch eine Sinusfunktion phasengeformt und in einer BOXCars-Anordnung zeitgleich überlagert. Der dritte Impuls fragt die induzierte Dynamik zeitverzögert ab und das resultierende Signal wird spektralaufgelöst detektiert.

Dieses Schema wurde von uns zunächst an β -Carotin erfolgreich demonstriert und anschließend systematisch auf unterschiedliche Systeme erweitert. Im β -Carotin konnte z.B. bei resonanter (490-507 nm) wie bei nicht resonanter (560 nm) Anregung durch entsprechende Phasenformung jeweils eine der drei hochfrequenten Schwingungsmoden 1000, 1200 und 1500 cm^{-1} (im angeregten Zustand auch 1800 cm^{-1}) exklusiv gegenüber den anderen angesprochen werden.

MO 33.3 Mo 14:45 HU 2091

Optimal Control of Fragmentation in Fullerenes and Model Dipeptides: Selective Mode Excitation Using Temporally Shaped Pulses? — •T. LAARMANN, I. SHCHATSININ, M. BOYLE, C.-P. SCHULZ, A. STALMASHONAK, N. ZHAVORONKOV, and I.-V. HERTEL — Max-Born Institut, Max-Born-Str. 2a, D-12489 Berlin, Germany

Optimal control of molecular processes using intense femtosecond lasers is one of the hot topics in modern laser science [1]. The goal is to manipulate molecular potential energy surfaces by the strong laser field, which forces a molecular system into a specific relaxation pathway. Temporally shaped laser pulses have become a much appraised technique for controlling and possibly analysing reaction pathways in complex systems. Closed feedback loop optimisation allows one to find optimal excitation schemes on potential energy surfaces without prior knowledge of their structure. We have applied this technique to obtain systematic control on fragmentation processes in C60 and in protected amino acids (Ac-Phe-NHMe), which can be regarded as "model dipeptides".

[1] A. D. Bandrauk, R. J. Gordon, and Y. Fujimura, *Laser Control and Manipulation of Molecules* (ACS Symposium Series Vol. 821, Oxford University Press, Oxford, 2002)

MO 33.4 Mo 15:00 HU 2091

MnBr(CO)₅ a candidate for a molecular qubit system — •BRIGITTE KORFF¹, ULRIKE TROPFMANN², KARL KOMPA¹, and REGINA DE VIVIE-RIEDLE² — ¹MPI für Quantenoptik, Hans-Kopfermann-Str. 1, 85748 Garching — ²LMU München, Department Chemie, Butenandtstr. 11, 81377 München

An increasing number of ideas for realizations of quantum computing have been discussed accompanied by experimental efforts. In our proposal we suggested to use the vibrational normal modes of polyatomic molecules as qubit systems and shaped femtosecond laser pulses as quantum gates [1,2]. When IR active modes are selected to encode the qubit system strong IR absorption bands are needed. Manganese-pentacarbonyl-bromide [MnBr(CO)₅] is found to be a good candidate. It is still of calculable size and fulfils the requirements for experimental realization. The two normal modes with the strongest absorption bands, which are of A₁ and E symmetry, were selected as qubits. The corresponding potential energy surface and dipole moments were calculated with DFT. Subsequently the vibrational eigenfunctions were evaluated. Elementary one and two qubit quantum gates were calculated using the multi target OCT variant [2]. Intensity and shape of the optimized laser fields are compared to experimental limits achieved in similar IR shaping setups.

[1] C.M. Tesch, L. Kurtz, R. de Vivie-Riedle, *Chem. Phys. Lett.* **343** (2001) 633-641.

[2] C.M. Tesch, R. de Vivie-Riedle, *Phys. Rev. Lett.* **89** (2002) 157901.

MO 33.5 Mo 15:15 HU 2091

Mechanismen der Quantenkontrolle mit komplex geformten femtosekunden Laserpulsen jenseits der Störungsrechnung — •MATTHIAS WOLLENHAUPT, ANDREAS PRÄKELT, CRISTIAN SARPE-TUDORAN, DIRK LIESE und THOMAS BAUMERT — Universität Kassel, Institut für Physik und

Adaptiv geformte femtosekunden Laserpulse werden mit grossem Erfolg zur Kontrolle atomarer und molekularer Prozesse eingesetzt.

Im schwachen Laserfeld sind die grundlegenden physikalischen Mechanismen der Kontrolle theoretisch und experimentell untersucht.

Die Mechanismen in intensiven komplex geformten Laserpulsen jenseits der Störungsrechnung sind jedoch weitgehend 'terra incognita' aufgrund der kohärente Kopplung elektronischer Zustände.

In diesem Beitrag stellen wir Experimente zur Multiphotonenionisation mit intensiven phasenmodulierten femtosekunden Laserpulsen an einfachen Modellsystemen vor. Mit Hilfe der simultanen Anregungs- und Ionisationsphotoelektronenspektroskopie erhalten wir Information über die transiente Populationsdynamik und die quantenmechanische Phase der beteiligten Zwischenzustände.

Insbesondere gelingt es, die Anregungsdynamik auf einzelne elementare Anregungsschritte zurückzuführen, wobei die selektive Bevölkung 'bekleideter' Zustände ein wesentlicher Mechanismus der Starkfeldkontrolle sind.

Einblicke in die Topologie dieses hochdimensionalen Kontrollproblems erlangen wir durch Experimente mit parametrisiert geformten Laserpulsen.

MO 33.6 Mo 15:30 HU 2091

Instantaneous dynamics and quantum control fields — •VOLKER ENGEL¹, STEFANIE GRÄFE¹, and CHRISTOPH MEIER² — ¹Institut für Physikalische Chemie, Universität Würzburg, Am Hubland, 97074 Würzburg — ²Laboratoire de Collisions, Agrégats et Réactivité, IR-SAMC, Université Paul Sabatier, 31062 Toulouse, France

The relation between laser pulses serving the purpose of controlling elementary molecular processes and the instantaneous dynamics of the perturbed system is investigated. The application of the conditions assuring a controlled change of the expectation value of an observable directly links the system motion to the external perturbation. Several numerical applications document that the derived control fields are efficient and can be interpreted clearly on physical grounds.

MO 33.7 Mo 15:45 HU 2091

Photodissociation studies of state-selected molecular ions by velocity map ion imaging — ●N. HENDRIK NAHLER, OLIVIER P.J. VIEUXMAIRE, ALEXANDER WEBB, and MICHAEL N.R. ASHFOLD — University of Bristol, School of Chemistry, Bristol BS8 1TS, UK

High resolution ion imaging methods have been used to study the photodissociation of ground state Br_2^+ ($^2\Pi_g$) and BrCl^+ ($^2\Pi$) cations, with spin-orbit state specificity, monitoring $^{79}\text{Br}^+$ and $^{35}\text{Cl}^+$ fragments as appropriate. Further studies are carried out on small polyatomic molecular ions, e.g. NH_3^+ and OCS^+ . The state-selected molecular ions are prepared by a 2+1 REMPI scheme and then dissociated by absorption of a single photon from a second tunable dye laser. Image analysis allows precise determination of the dissociation energies of ground state ions and values for the respective spin-orbit splitting constants. These experiments also provide information on the angular anisotropy of the product channels and their branching ratios.

The dissociation channels from BrCl^+ show predominantly parallel character. Branching ratios into the various Br^+ (3P_J) and Cl^+ (2P_J) channels will be presented and discussed in the context of the various participating excited state potentials. Three photon excitation of BrCl resonance enhanced at the two photon energy by ($^2\Pi_{1/2}$) $5s\sigma$, $v \geq 0$ levels also generates superexcited BrCl molecules which dissociate to form $\text{Br}^{(*)} + \text{Cl}^{**}$ products. The Cl^{**} atoms are ionized by further photon absorption. The $\text{Br} + \text{Cl}^{**}$ products show angular distributions characterized by P_2 , P_4 , and P_6 terms; this we attribute to a $\Sigma \rightarrow \rightarrow \Pi \rightarrow \Pi$ transition in BrCl .