

MO 35 Quantum Control II

Zeit: Montag 16:30–18:00

Raum: HU 2091

MO 35.1 Mo 16:30 HU 2091

Controlling vibrational wave packets in condensed phase: Dispersion and coherence for Br₂ in solid Ar — ●MARKUS GÜHR, HEIDE IBRAHIM, and NIKOLAUS SCHWENTNER — Institut für Experimentalphysik, Freie Universität Berlin, Arnimallee 14, 14195 Berlin, Germany

Interferences in vibrational wave packets of Br₂ molecules are controlled in presence of a solid Ar environment that provides decoherence. By applying a negatively or positively chirped excitation pulse, one can set the clock backward respectively forward in the wave packet propagation with respect to dispersion. Based on this mechanism, we present a general scheme to record vibrational decoherence. Wave packets are spatially focused at a time T_{opt} by applying negatively chirped pulses. From the focussing contrast, we determine a vibrational dephasing time on the electronic B state of $T_{deph}^{vib} = 3$ ps. We use positively chirped pulses to bring the formation of fractional revival structures forward in time with respect to T_{deph}^{vib} . By exciting four distinct vibrational levels with such a pulse, we observe a 1/6 revival indicating the vibrational coherence time T_{vib}^d for these four levels. The required positive chirp prolongs the pulse duration by a factor of ten to $\Delta\tau = 300$ fs. Electronic dephasing with the time constant T_{deph}^{el} restricts the revival control fidelity to parts of the pulse with $\Delta\tau < T_{deph}^{el}$, which allows to derive $T_{deph}^{el} > 300$ fs.

[1] M. Gühr, H. Ibrahim and N. Schwenter, Phys. Chem. Chem. Phys. **6** (2004) in print

MO 35.2 Mo 16:45 HU 2091

Single-beam CARS mit geformten Femtosekunden-Pulsen — ●B. VON VACANO, W. WOHLLEBEN und M. MOTZKUS — Physikalische Chemie, Philipps-Universität, 35032 Marburg

Allein durch die Veränderung der Phasenstruktur der fs-Anregungspulse erreicht Single-beam CARS (Coherent Anti-Stokes Raman Scattering) ein vollständiges CARS-Schema mit einer einzigen Laserquelle [1]. Wir demonstrieren die Methode erstmals im Bereich niederfrequenter Moden von 50-400cm⁻¹ und erproben ihre Anwendung auf Reinstoffe in flüssiger Phase sowie auf Moleküle in Lösung. Die durch die kohärente Kontrolle des CARS-Prozesses erreichte spektrale Auflösung von unter 17cm⁻¹ ist um eine Größenordnung besser als die spektrale Breite der Anregungspulse von 250cm⁻¹ (FWHM). Der nichtresonante Untergrund wird, bei Leistungen von 10-120mW, durch die periodische Phasenmodulation um mehr als eine Größenordnung unterdrückt.

Die inhärente Ortsauflösung des nichtlinearen Prozesses wird auf der Mikrometerskala demonstriert. Das große Potential für die Mikroskopie mit chemischem Kontrast liegt in der einfachen Kontrastmaximierung durch selektiven Nachweis bestimmter Raman-Moden-Strukturen.

[1] N. Dudovich, D. Oron, Y. Silberberg, J. Chem. Phys. **118**, 9208 (2003).

MO 35.3 Mo 17:00 HU 2091

Femtosekunden-zeitaufgelöste Dynamik von K₂ - Einfluss der Laserpolarisation — ●CHRISTIAN HORN, MATTHIAS WOLLENHAUPT, OKSANA GRAEFE, DIRK LIESE und THOMAS BAUMERT — Universität Kassel, Institut für Physik und CINSaT, Heinrich-Plett-Str. 40, D-34132 Kassel, Germany

Eine Erweiterung der Möglichkeiten für kohärente Kontrolle ergibt sich, wenn man den Polarisationszustand des Laserpulses als zusätzlichen Kontrollmechanismus verwendet. Dies wurde bereits erfolgreich in einem Experiment mit adaptiver Rückkopplung demonstriert [1]. Wir untersuchen die Multi-Photon Ionisation des K₂ Moleküls in einem Pump-Probe Experiment bei 800nm an einem Molekularstrahl mit Ionen- und Elektronennachweis. Dabei werden die Polarisationsrichtungen des Pump und des Probe Pulses parallel und senkrecht zueinander gewählt. Die Übergangsmomente $A^1\Sigma_u^+ \leftarrow X^1\Sigma_g^+$ und $2^1\Pi_g \leftarrow A^1\Sigma_u^+$ stehen senkrecht aufeinander, so dass unterschiedliche Polarisationen des Probe-Pulses zu einer unterschiedlichen Dynamik führen. Ergebnisse aus Experimenten mit einer Polarisierung des Probe-Pulses parallel und senkrecht zu der des Pump-Pulses werden vorgestellt und mit durchgeführten Moleküldynamik - Simulationen verglichen.

[1] T. Brixner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**(20), 208301 (2004)

MO 35.4 Mo 17:15 HU 2091

Intense-field alignment of molecules confined in octahedral fields — ●TONI KILJUNEN¹, BURKHARD SCHMIDT², and NIKOLAUS SCHWENTNER¹ — ¹Institut für Experimentalphysik, FU-Berlin, Arnimallee 14, 14195 Berlin — ²Institut für Mathematik II, FU-Berlin, Arnimallee 2-6, 14195 Berlin

We investigate the combined effect of static octahedral potential and anisotropic interaction with intense, linearly polarized laser pulses on the rotational motion of linear molecules. Time-independent computations reveal a rich pattern of avoided crossings of energy levels corresponding to pendular states with different degree of alignment along the laser field polarization. Time-dependent computations put forward a scheme to manipulate the alignment by adiabatic and non-adiabatic passages through the avoided crossing regions, thus allowing for control over direction-dependent reaction mechanisms in solids.

MO 35.5 Mo 17:30 HU 2091

Molecule-Specific Spectroscopy in Frequency and Time Domain Using Optimal Control of Femtosecond Laser Pulses — ●AJAY K. SINGH, JAKOW KONRADI, and ARNULF MATERNY — International University Bremen, School of Engineering and Science, Campus Ring 1, 28759 Bremen (e-mail: a.materny@iu-bremen.de)

For several applications, like microscopic imaging of biological samples, it is of utmost importance to filter out contributions of certain components. Different techniques are used for this purpose. Laser spectroscopy enables one to identify specific substances in a complex sample or a mixture of different chemicals. Recently, we were able to demonstrate that by controlling the phase shape ("chirp") of a femtosecond laser pulse in a nonlinear four-wave mixing process, vibrational modes of the molecules could be selectively enhanced in the spectrum. In our contribution we will present results of femtosecond CARS (Coherent anti-Stokes Raman Scattering) experiments on systems consisting of different chemical compounds. We have applied a computer-controlled pulse shaper to optimize the phase shape of one of the interacting laser pulses such that contributions of one component are selectively enhanced over the spectral lines of the rest in the CARS spectrum. The optimization process is guided by a learning evolutionary algorithm. In our presentation we will discuss possible mechanisms behind the selective filtering of molecule-specific spectral lines.

MO 35.6 Mo 17:45 HU 2091

Mikrospiegel-Modulator zur direkten Formung ultravioletter Femtosekundenimpulse — ●S. KAHRA¹, T. BUCKUP² und M. MOTZKUS² — ¹MPI für Quantenoptik, 85748 Garching — ²Physikalische Chemie, Philipps-Universität, 35032 Marburg

Zur Untersuchung und Steuerung ultraschneller physikalisch-chemischer Prozesse werden geformte fs-Laserimpulse eingesetzt. Die Mehrzahl organischer Moleküle zeigt elektronisch-resonante Absorption erst im ultravioletten (UV) Spektralbereich. Hier ist wohlbekanntes direktes Impulsformen mit Flüssigkristallmasken nicht möglich, da die verwendeten Flüssigkristalle dort stark absorbieren. Neuartige Mikrospiegel stellen dagegen eine vielversprechende Alternative für die direkte Impulsmodulation im UV dar [1].

Wir stellen systematische Untersuchungen mit einem optimierten Aufbau zur direkten Formung von UV-Impulsen vor und demonstrieren anhand von Impulskompression und dem Aufprägen zeitlicher Strukturen von fs bis zu ps Vorteile und Einschränkungen der Methodik. Zentrales Element ist dabei ein Micro Mirror Array (IPMS, Dresden), bei dem 200*240 je 40*40µm² große reflektive Elemente unabhängig voneinander um bis zu 300nm angehoben werden können. Mit der erfolgreichen Einbindung in eine evolutionäre Lernschleife wird die Tür zur Kohärenten Kontrolle im UV aufgeschlagen.

[1] Appl. Phys. B **76**, 711 (2003)