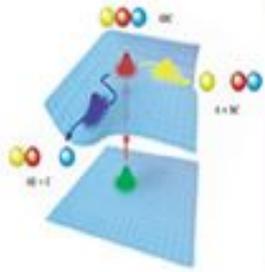


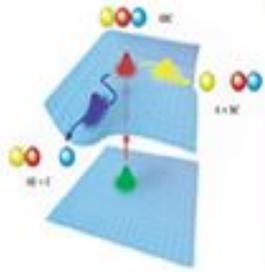
Quelle: (1) Brixner, Physik. Blätter, 2001

# Kohärente Kontrolle von chemischen Reaktionen mittels Lasern



# Gliederung

1. Motivation
2. Einfache Kontrollschemata
3. Optimale Kontrolle und Lernschleife
4. Ausblick und Zusammenfassung



# Motivation

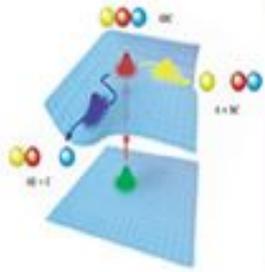
- „The heart of chemistry is the chemical reaction, meaning the breaking and formation of chemical bonds between atoms.“ (Prof. Noren bei der Verleihung des Nobelpreises an A. Zewail)
- Nobelpreis für zeitaufgelöste Beobachtung von chemischen Reaktionen
- Nächster logischer Schritt: Steuerung



Ahmed H. Zewail

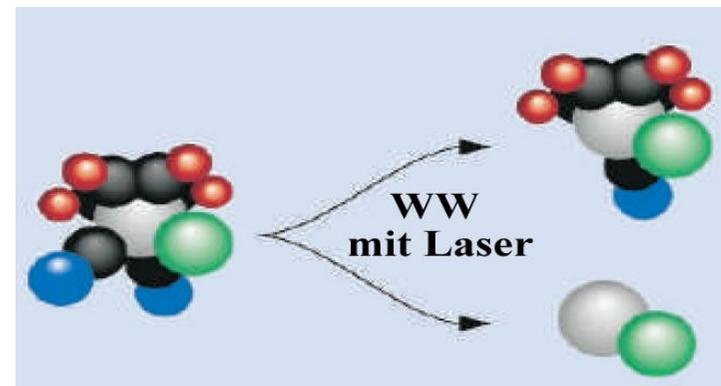
Egypt and USA

California Institute of  
Technology (Caltech)  
Pasadena, CA, USA

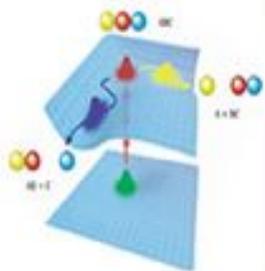


# Motivation

- Mikroskopische statt makroskopische Steuerung von Reaktionen
  - Reaktionen außerhalb der Thermodynamik
  - Herstellen neuer Substanzen
  - Effizientere Produktionsmethoden



Quelle: (1) Brixner, Physik. Blätter, 2001

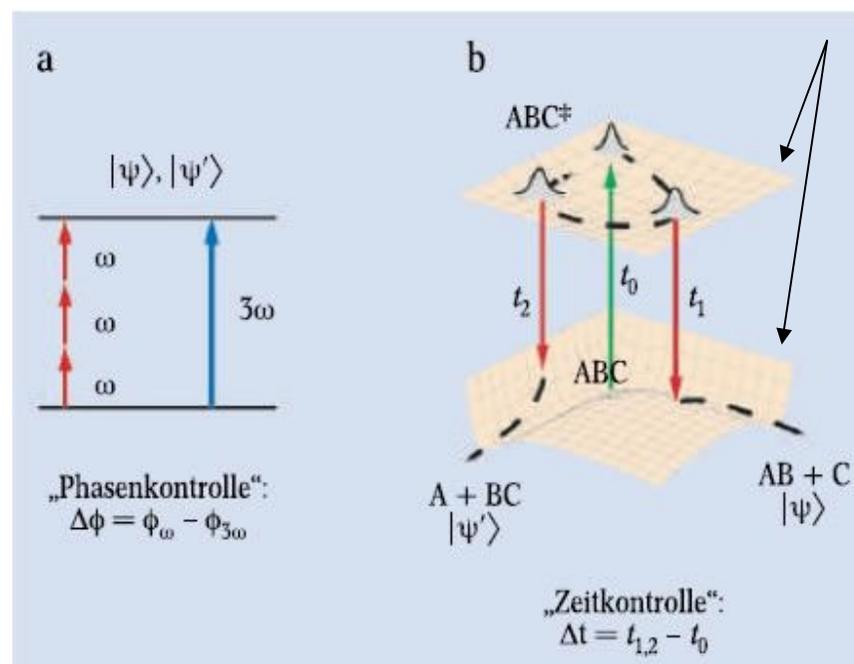


# „Einfache“ Steuerungsschemata

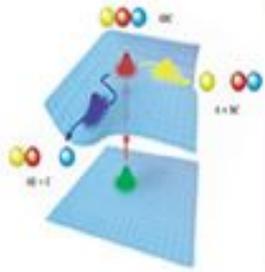
- Kontrolle eines Parameters der Laserfelder

- Phasenkontrolle
- Zeitkontrolle

Potential-  
flächen



Quelle: (1) Brixner, Physik. Blätter, 2001

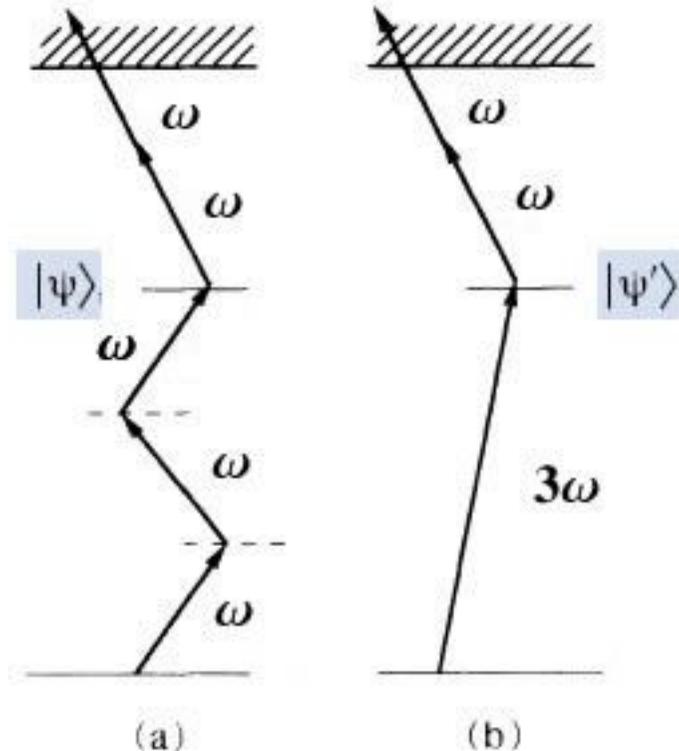


# Phasenkontrolle quantitativ

Phasenkontrolle: Reaktion abhängig von relativer Phase der beiden Laserfelder

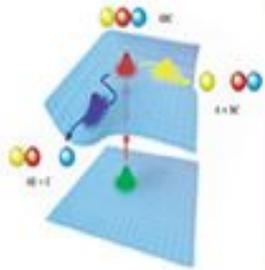
$$W \sim \frac{2\pi}{\hbar^2} |\mu E^{uv} e^{i\Theta_1} + \mu^{(3)} (E^{vis} e^{i\Theta_2})^3|^2$$

$$W \propto (1 + \frac{5}{8} M^2) + \frac{M \cos(3\phi_2 - \phi_1)}{2},$$

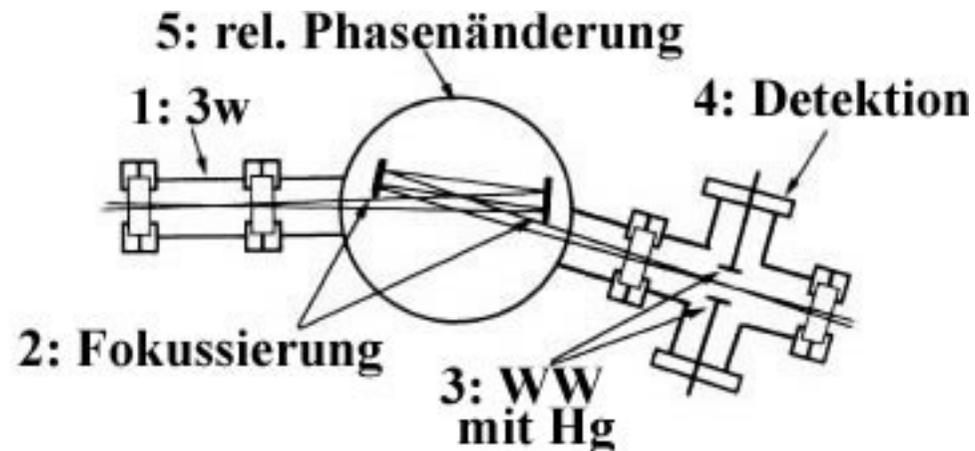


Ionisationskanäle von Hg

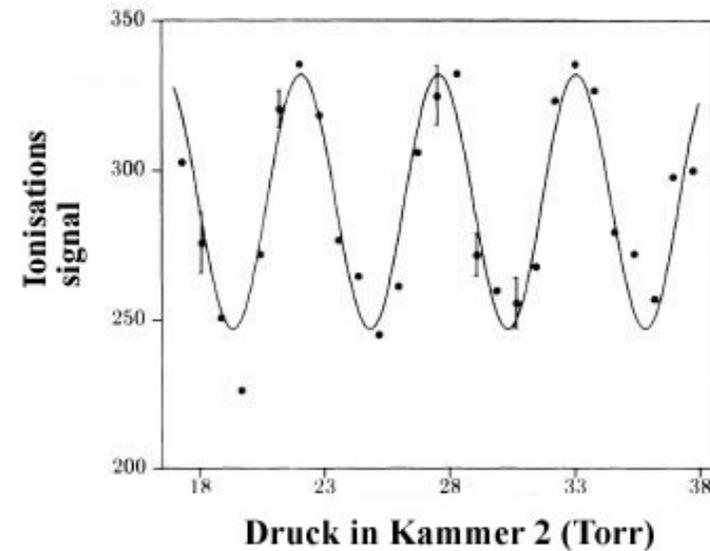
Quelle: (3) Chen, PRL, 1990



# Phasenkontrolle: experimentelle Umsetzung

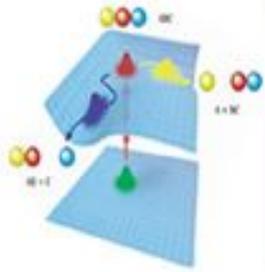


Quelle: (4) Chen PRL, 1990



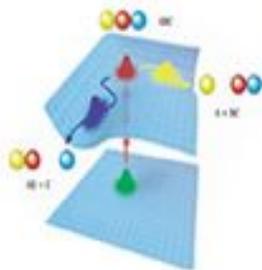
Quelle: (4) Chen PRL, 1990

Fazit: Phasenkontrolle ist  
experimentell bestätigt!



# Vom Modellsystem zur Wirklichkeit

- Atome → Molekül
- Man kann nicht immer Phasenkontrolle anwenden!
- Verwendete Laserpulse werden sicherlich komplizierter
- Man muss mehr als einen Parameter variieren!



# Optimale Kontrolle

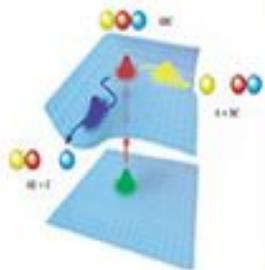
- Minimierung des folgenden Funktionals bei Erfüllung der Schrödingergleichung und Randbedingungen

$$J[u] = \langle \psi(\cdot, T) - \hat{\psi}(\cdot), \psi(\cdot, T) - \hat{\psi}(\cdot) \rangle_X + \alpha \langle u, u \rangle_{X'}$$

$$L[u, \psi, p] := J[u] + \operatorname{Re} \int_0^T \int_{\Omega} p \left[ \dot{\psi} + \frac{i}{\hbar} (H_0 + u) \psi \right]^* dx dt$$

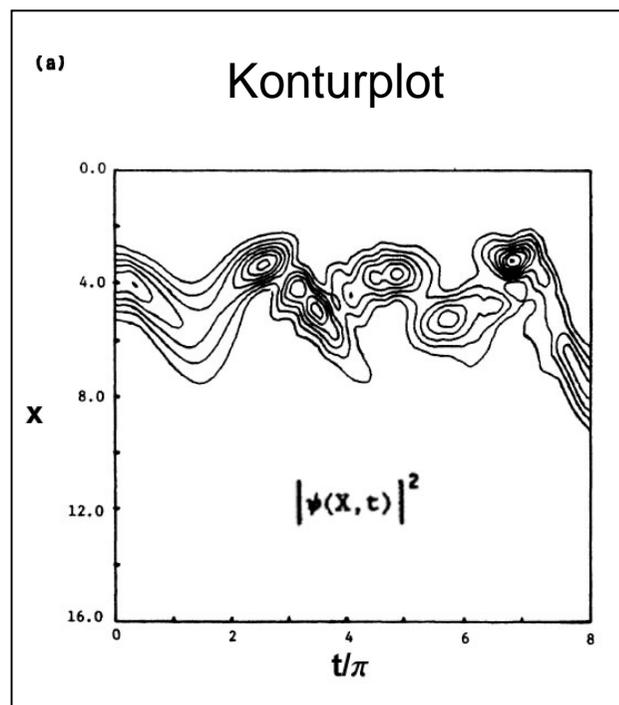
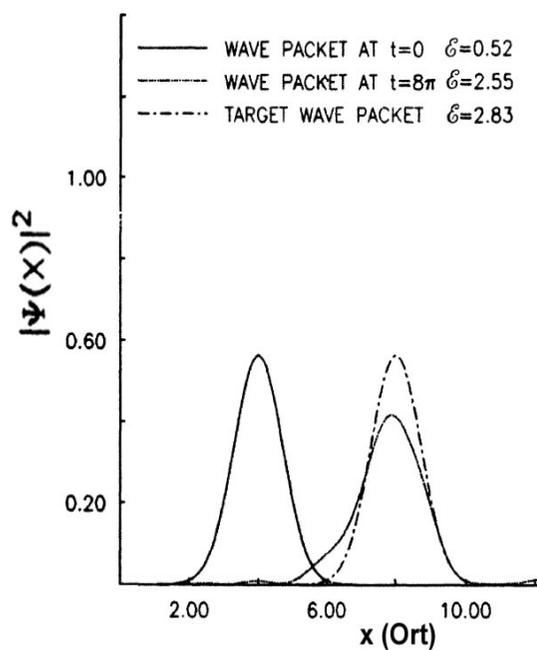
- Iterative Berechnung des Laserfeldes

Quelle: (5) Peirce, Phys. Rev. A, 1988

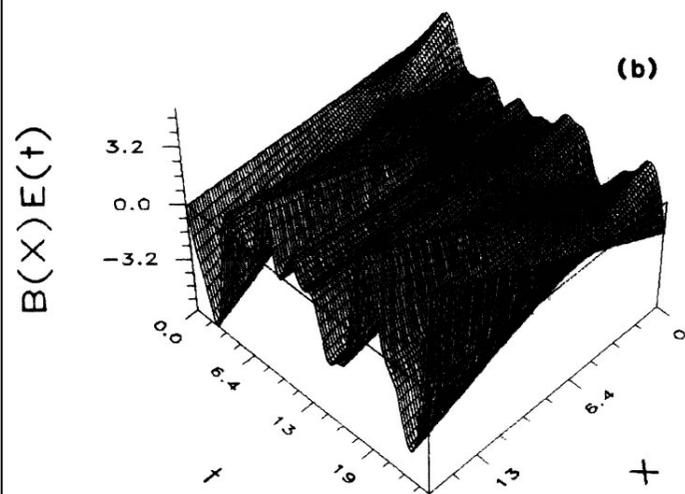


# Anwendung

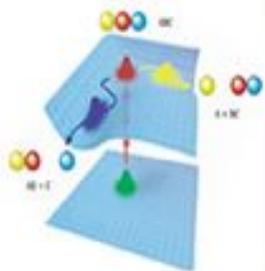
## Steuerung eines Wellenpaketes



## Angelegtes Potential



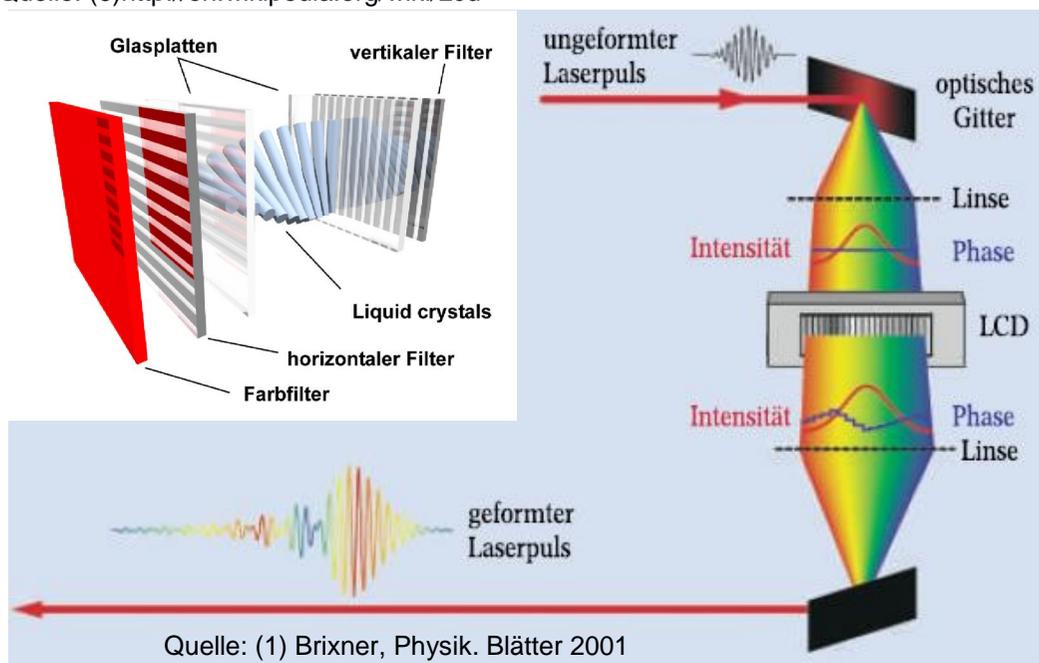
Quelle: (5) Peirce, Phys. Rev. A, 1988



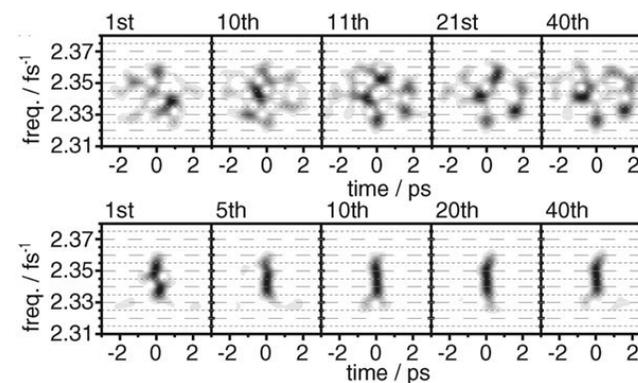
# Experimentelle Umsetzung

- Pulsformer
- LCD (liquid crystal display)

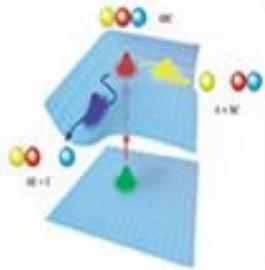
Quelle: (6) <http://en.wikipedia.org/wiki/Lcd>



## Beispielpulse

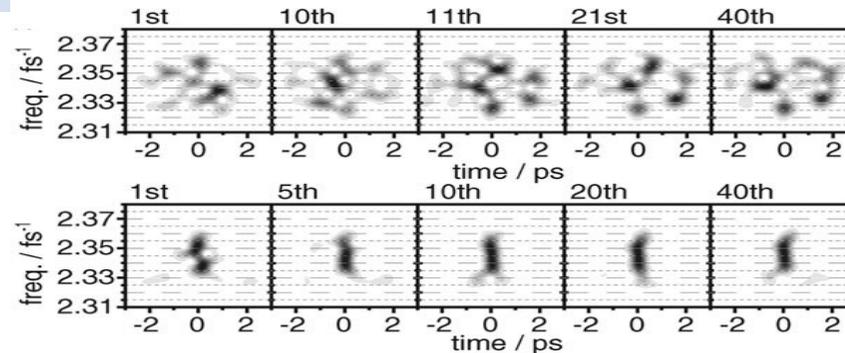
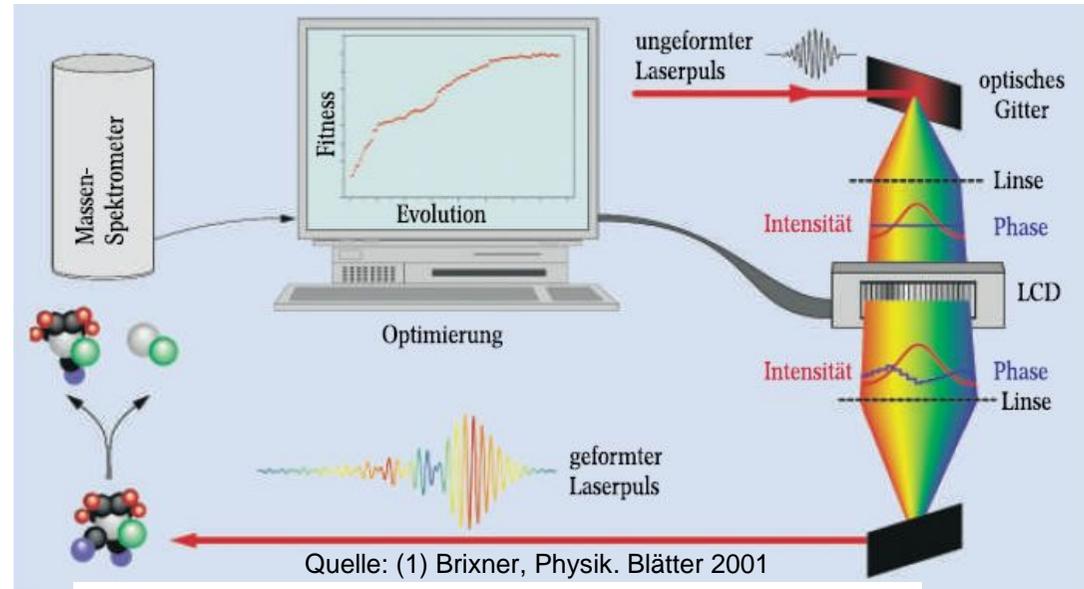


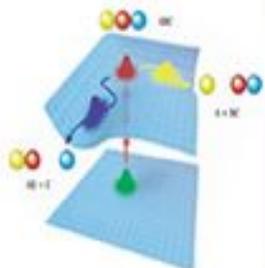
Quelle: (7) Nuernberger, ChemPhysChem, 2007



# Selbstlernende Schleife

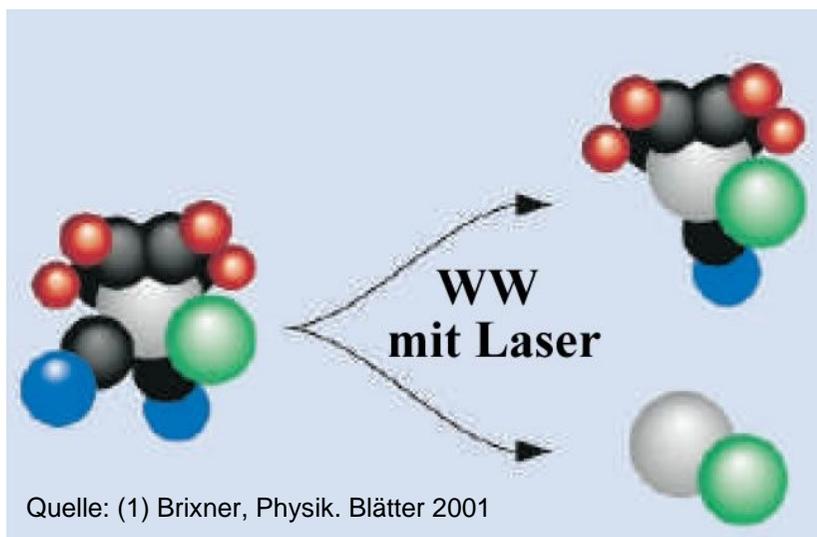
- Iterative Verbesserung der Pulsform
- Jedes Mal neue Probe
- Beispiele für Pulse verschiedener Generationen



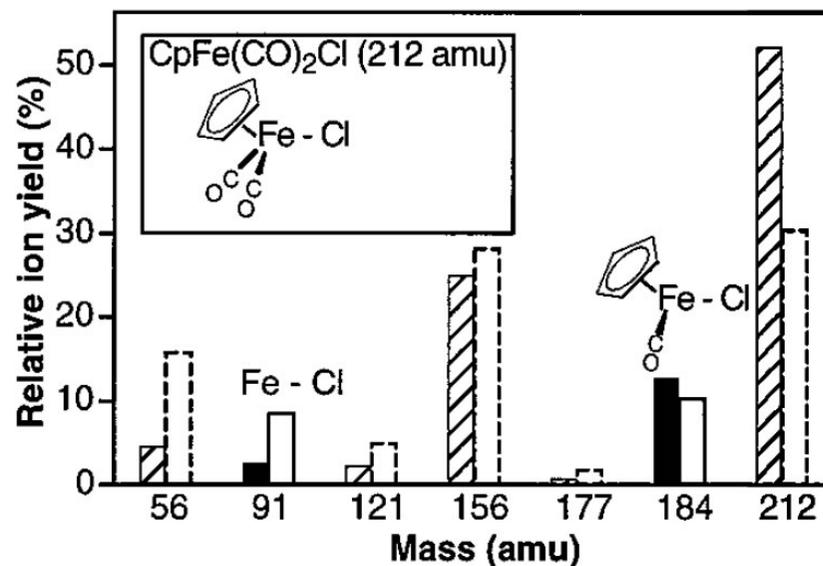


# Erfolge

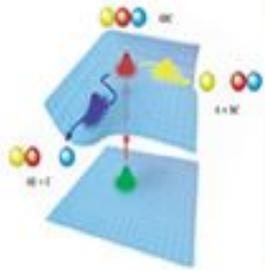
## Steuerung von Reaktionen bei metallorganische Verbindungen



Dissoziation von  $\text{CpFe(CO)}_2\text{Cl}$



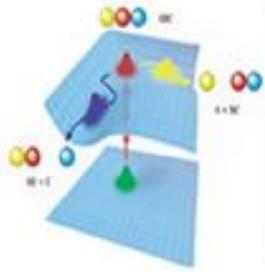
Relative Ionenausbeute



# Ausblick

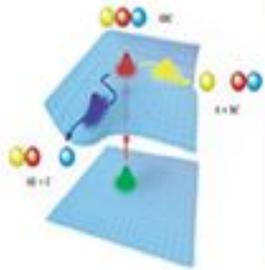
- Entwicklung vom Bindungsbrechen zur Synthese von Elementen
- Inverse Probleme
- Weitere Anwendungen im Bereich
  - Optimierte Erzeugung von hohen Harmonischen (bis zu weichen Röntgen)
  - Atom und Molekülphysik ( Formen von Wellenpaketen und selektive Photoanregung)
  - Biophysik (Optimierung von nichtlinearen Bildgebungsverfahren)
  - Quantencomputer ( Benutzen von Schwingungen als Q- Bits)

Quelle: (9) Wollenhaupt , Ann. Rev. Phys. Chem. 2005



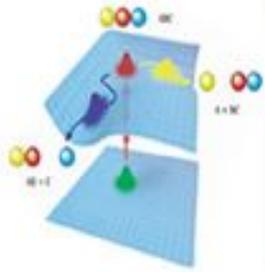
# Zusammenfassung

- Steuerung von chemischen Reaktionen möglich!
- Entwicklung von iterativen Konzepten für komplizierte Reaktionen.
- Viele weitere Anwendungen in verschiedensten Bereichen denkbar!



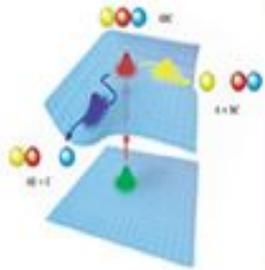
# Vielen Dank für die Aufmerksamkeit!

- (1) Laser-optimierte Femtochemie ,Tobias Brixner und Gustav Gerber, Physikalische Blätter, 2001
- (2) [http://nobelprize.org/nobel\\_prizes/chemistry/laureates/1999/](http://nobelprize.org/nobel_prizes/chemistry/laureates/1999/)
- (3) Interference between optical transitions, Ce Chen et al. , Physical review letters, 1990
- (4) Measurements of optical phase variations using interfering multiphoton ionization processes, Se Chen and D.S. Elliot, Physical Review Letters, 1990
- (5) Optimal Control of quantum mechanical systems: Existence, numerical approximation, and applications, Peirce et al., Physical review A, 1988
- (6) <http://en.wikipedia.org/wiki/Lcd>
- (7) Femtosecond quantum control of molecular dynamics in the condensed phase Nuernberger et al., Chemical Physics physical Chemistry, 2007
- (8) Control of Chemical Reactions by Feedback-Optimized Phase-Shaped Femtosecond Laser Pulses, Assion et al., Science, 1998
- (9) Femtosecond laser photoelectron spectroscopy on atoms and small molecules: Prototype Studies in Quantum Control, Wollenhaupt et al., Annu. Rev. Phys. Chem., 2005
- (10) Whither the Future of Controlling Quantum Phenomena?, Rabitz et al. Science,
- (11) Quantum Control of Gas-Phase and Liquid-Phase Femtochemistry, Tobias Brixner und Gustav Gerber, ChemPhysChem, 2000
- (12) Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator, weiner et al., Optics Letters, 1990
- (13) Feedback-controlled optimization of amplified femtosecond laser pulses, Brixner et al., Applied Physics B , 1999
- (14) Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators, Weiner, Review of Scientific Instruments, 2000

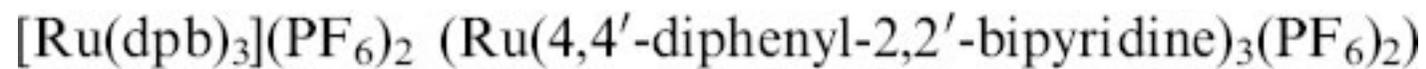
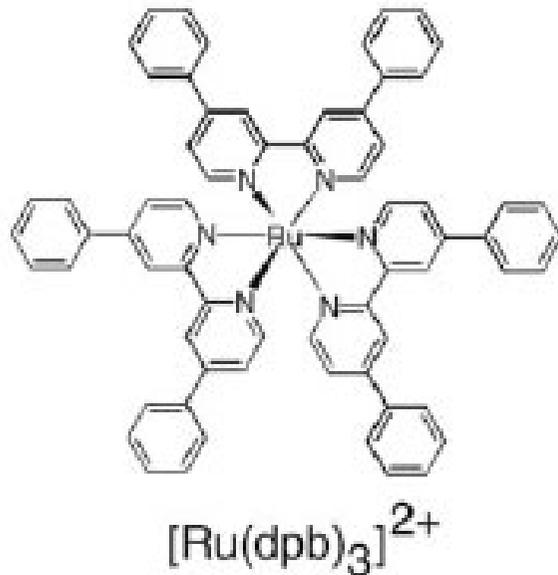


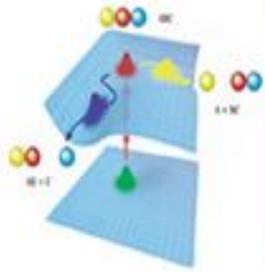
# Anhang

- Molekül zu Beispieimpuls
- Interferenzdaten in einfach



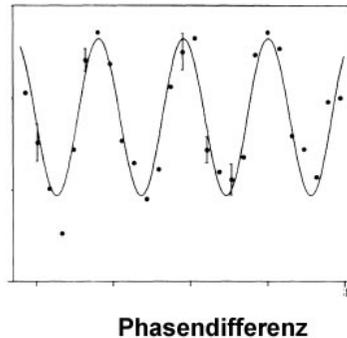
# Molekül zu Beispielpuls





# Mehr Informationen zum Experiment:

Besetzungswahrscheinlichkeits  
des Zielzustandes



Ionisationswahrscheinlichkeit:

$$W \propto \left(1 + \frac{5}{8} M^2\right) + \frac{M \cos(3\phi_2 - \phi_1)}{2},$$

Änderung der relativen Phase:

$$3\phi_2 - \phi_1 = \frac{6\pi l \Delta\rho}{\lambda} (n^{554} - n^{185}).$$

Definition von M:

$$M = (E^{\text{vis}})^3 \mu^{(3)} / E^{\text{uv}} \mu$$