

Kapitel 5

Adaptive Rückkopplungs-Optimierung

Die gezielte und computergesteuerte Pulsformung (Kapitel 4.2) hat die photoinduzierte Steuerung molekular-dynamischer Prozesse wieder stark in den Vordergrund geschoben. Maßgeschneiderte fs-Pulse können derart mit dem Molekül in Wechselwirkung treten, dass eine maximale Population des gewünschten Zielzustands erreicht wird. Die Theory der optimalen Kontrolle (*Optimal Control Theory*, OCT, siehe Abschnitt 2.2.3) bietet die Möglichkeiten zur Berechnung dieser Pulsformen, die dann in einer sogenannten offenen Schleife (*open loop*) vom Pulsformer realisiert und mit dem Molekül zur Wechselwirkung gebracht werden können. Solche Pulsformen lassen sich durch das Design reiner spektraler Phasenfiter (*phase-only*) oder kombinierter Phasen- und Amplitudenfilter erzeugen. Während erstere nur mit Hilfe von Optimierungsmethoden bestimmt werden können (siehe zum Beispiel [155]), kann der gewünschte zeitliche Intensitäts- und Phasenverlauf durch vorhandene Phasen- und Amplitudenfilter analytisch berechnet werden (siehe Abschnitt 4.4.6). In vielen Fällen übersteigen allerdings die theoretisch vorhergesagten Pulsformen die experimentelle Realisierbarkeit, so dass es nicht zum gewünschten Ergebnis kommt (siehe Kapitel 2). Dies liegt an den experimentellen Rahmenbedingungen wie der Bandbreite und der Maximalintensität des Lasers, der endlichen Auflösung des Pulsformers und der Laserfluktuationen sowie anderen systematischen Fehlern und Rauschquellen des experimentellen Systems. Erste Ansätze in der OCT berücksichtigen die experimentellen Begrenzungen beim Design optimaler Felder [156]. Zudem liegt den Berechnungen die genaue Kenntnis des Hamiltonoperators zugrunde, so dass bisher nur an sehr ausgewählten Modellsystemen optimale Laserpulse vorhergesagt werden konnten. Besonders für größere molekulare Systeme liegen diese Kenntnisse nicht vor.

R. Judson und H. Rabitz haben daher vorgeschlagen [5], die offene Schleife experimentell zu schließen und dem Interaktionsprozess aus molekularem System und Laserpuls die Suche nach der optimalen Pulsform für den zu steuernden Prozess selbst zu überlassen, das heißt die zweitabhängige Schrödingergleichung durch die Pulsform selbst zu lösen¹. Die dazu benötigte experimentelle Methode der adaptiven Feedback-Optimierung sieht vor, den fs-Puls schrittweise bzw. iterativ zu verbessern, bis ein geeignet gewähltes experimentell zugängliches

¹Im *abstract* der entsprechenden Publikation heißt es dazu treffend: "...Over a series of pulses the algorithm learns an optimal pulse sequence. The experimental apparatus, which consists of a laser, a sample of molecules, and a measurement device, acts as an analog computer that solves Schrödinger's equation *exactly*, in real time". [5]

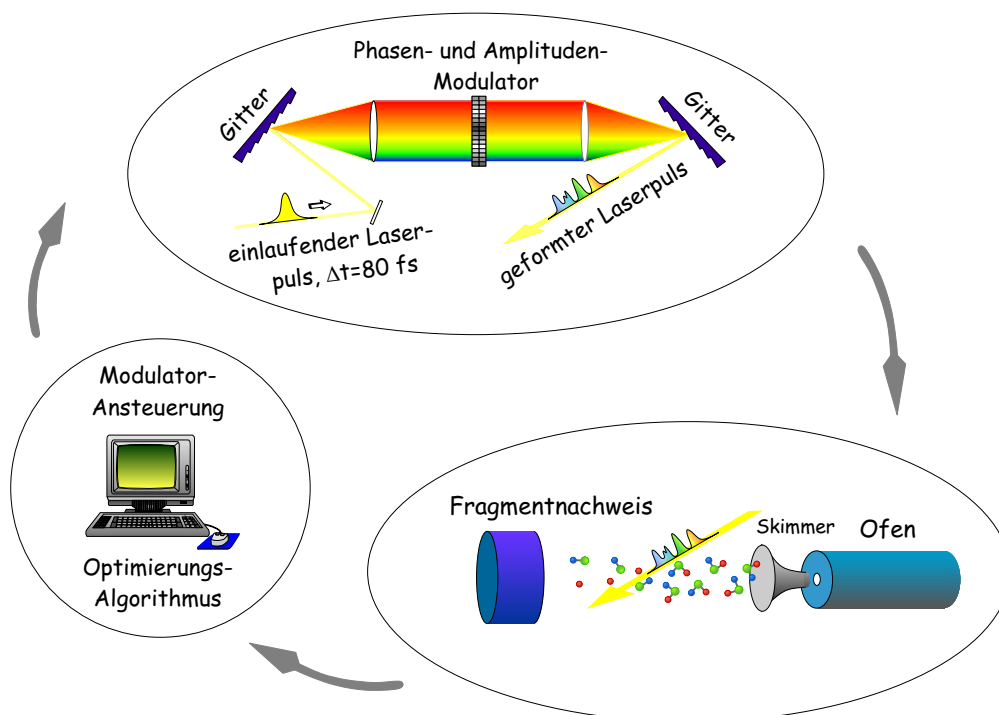


Abbildung 5.1: Experimentelle Methode der selbstlernenden Rückkopplungsoptimierung. Der evolutionäre Optimierungsalgorithmus steuert den Pulsformer an und die erzeugten Pulsformen werden auf einen Molekularstrahl fokussiert. Die Größe des Ionensignals ist ein Maß für die Bewertung der Pulsform. Iterativ werden Pulsformen gefunden, die verbesserte Ionenausbeuten gewährleisten. Nach der Konvergenz der Optimierung ist der optimale Laserpuls gefunden.

Messsignal, das den zu erreichenden Zielzustand repräsentiert, maximiert bzw. minimiert worden ist.

Die experimentelle Rückkopplungssteuerung (auch *Optimal Control-Experiment*, OCE, genannt) stellt eine geschlossene Schleife (*closed loop*) dar [5]. Das durch einen geformten Puls erzeugte Mess-Signal wird direkt in das Optimierungsverfahren eingebunden, indem Pulsformer und molekulare Probe über einen Optimierungsalgorithmus verbunden werden. In Abbildung 5.1 ist das in der vorliegenden Arbeit realisierte Verfahren schematisch dargestellt. Der evolutionäre Optimierungsalgorithmus steuert den Pulsformer an und die geformten Pulse werden auf die neutralen Moleküle gestrahlt. Als Resultat wird das photoinduzierte Ionensignal der Moleküle oder Fragmente gemessen und als Maß für die Güte der Pulsform (*fitness*) an den Optimierungsalgorithmus weitergegeben. Anhand der *fitness* werden die besten Pulsformen ausgewählt und als Basis für die Erzeugung neuer Pulsformen („Nachkommen“) verwendet. Damit erfüllt der Algorithmus die Aufgabe, diejenige Pulsform zu finden, die die Intensität des Ionensignals maximiert (oder minimiert).

Im Gegensatz zu makroskopischen Rückkopplungs-Steuerungen hat es der Algorithmus hier bei jeder Iteration mit einer neuen, allerdings identisch präparierten Probe zu tun, also zum Beispiel wieder mit einem Molekül im Grundzustand. Die iterative Verbesserung erfolgt auf der Grundlage der Bewertung der vorhergehenden Iteration. Das System lernt also von Iteration zu Iteration dazu. Man nennt daher diese geschlossene Schleife auch Lernschleife

(*learning loop*) [5]. Diese geschlossene Lernschleife kann den optimalen Weg zum Erreichen des Zielzustands finden, ohne dass *a priori* das Quantensystem bekannt ist [5]. Damit kann also eine molekulardynamische Steuerung ohne die Kenntnis des Hamiltonoperators und damit der Potenzialfläche des Moleküls durchgeführt werden.

Neben der Möglichkeit der Steuerung quantendynamischer Prozesse wie etwa der Steuerung chemischer Reaktionen (siehe Kapitel 2) ist besonders der molekulare Steuerungsprozess selbst von Interesse. Dabei erhofft man sich nicht nur Einsichten in die vielfältigen Wechselwirkungsprozesse des Moleküls mit dem Laserlicht, sondern es besteht die Möglichkeit, Informationen über das Molekül wie zum Beispiel über die Form der Potenzialenergieflächen (*Potential Energy Surface*, PES) zu erhalten. Diese Vorgehensweise ist als das Inversionsproblem (*problem of inversion*) bekannt [82]. Der optimale Puls erzeugt und "lenkt" das molekulare Wellenpaket molekülspezifisch vom Anfangs- bis zum Endzustand und tastet damit die spezifische Potenzialenergiefläche sehr genau ab. Die Information über das Molekül ist damit im optimierten Feld codiert. Für komplexe Systeme werden diese Informationen sehr "versteckt" sein. Erste Ansätze schlagen zur Dekodierung dieser Informationen die Einbindung geeigneter Inversions-Algorithmen in die geschlossene Feedback-Schleife vor [82].

In diesem Kapitel wird zunächst die Funktionsweise von nicht-deterministischen Optimierungsalgorithmen unter besonderer Berücksichtigung der evolutionären Strategien erläutert. Der anschließende Teil stellt die Implementierung des Algorithmus für die experimentelle Realisierung der geschlossenen Rückkopplungsschleife dar. Im Fall der sogenannten freien Optimierung werden die Kombinationen der 128 Phasenwerte des Pulsformers optimiert. Das Konzept der parametrischen Optimierung wird in Kapitel 5.3 besprochen. Die letzten Abschnitte stellen eine rein optische Anwendung der adaptiven Rückkopplungsoptimierung dar: die automatisierte Rekompensation dispersionsverbreiterter fs-Pulse.

5.1 Nicht-deterministische Optimierungsalgorithmen

Es existieren zwei Anforderungen, die der Algorithmus für die Adaptive Feedback-Optimierung erfüllen muss:

- Der Algorithmus sollte eine *globale* Suchstrategie verfolgen, um in besonders großen Suchräumen eine qualitativ herausragende Lösung zu finden.
- Der Algorithmus sollte unter *experimentellen* Bedingungen konvergieren können.

In Bezug auf die Bestimmung des jeweils nächsten Schrittes im Parameterraum lassen sich die Optimierungsverfahren unterteilen in deterministische Algorithmen (zum Beispiel die Gradienten- oder das Simplexverfahren), die nach analytisch festfügten Operationen ablaufen, und nicht-deterministische Algorithmen, die durch stochastische Prozesse gelenkt werden [157]. Innerhalb der nicht-deterministischen Algorithmen haben sich zwei Klassen von Suchstrategien bewährt: Die eine Klasse versucht, ausgehend von einer Vielzahl von Startpunkten, möglichst alle lokalen Minima abzutasten, wobei das tiefste dann dem globalen Minimum entspricht. Die andere Strategie sucht nach einem lokalen Minimum und unternimmt von dort aus zufällige Sprünge in die multidimensionale Nachbarschaft, um ein eventuell tieferliegendes Minimum zu finden. Zur ersten Gruppe zählen die Genetischen Algorithmen [158, 159] und evolutionären Strategien [160, 161], die in Abschnitt 5.1.1 genauer beschrieben werden und in dieser Arbeit zum Einsatz gekommen sind. Ein Repräsentant der zweiten Gruppe ist das *Simulated Annealing* [162].

Die zweite Anforderung verlangt, dass der Algorithmus auch dann robust konvergiert, wenn sowohl die Eingangsseite als auch die Ausgangsseite mit systematischen Fehlern und experimentell unabdingbarem Signalrauschen behaftet sind. Die stabile Konvergenz hängt ebenfalls von der Anzahl der Optimierungsparameter ab. Die Auswirkungen auf das Konvergenzverhalten werden an den Ergebnissen zweier Simulationen demonstriert:

1. T. Feurer vergleicht die Konvergenzeigenschaften von *Simulated Annealing*, Evolutionäre Algorithmen und *Simplex-Downhill*-Algorithmen für eine simulierte Drei-Parameter-Optimierung mit Rauschen auf dem Feedback-Signal [163]. Ohne Rauschen konvergieren alle drei Algorithmen (Abbildung 5.2 a-c). Wird das Rauschen eingeschaltet, versagt der deterministische *Simplex-Downhill*-Algorithmus. Die nicht-deterministischen Verfahren des *Simulated Annealing* und des Evolutionären Algorithmus zeigen dagegen ein fast unverändertes Konvergenzverhalten, das sich erst ändert, wenn die Anzahl der Parameter erhöht wird.
2. Eine Simulation von Toth et al. vergleicht das Konvergenzverhalten von Genetischen Algorithmen (GA) und *Simulated Annealing* (SA) bei systematischen Fehlern (Sättigung, begrenzte Auflösung, etc.) und Signalrauschen [164]. Fehler und Rauschen werden für die Eingangs- und Ausgangsseite simuliert. Im Optimierungsexperiment stellen Lasersystem und Pulsformer die Eingangsseite dar, während der Molekularstrahl und die Ionen-Detektion für die Ausgangsseite stehen. Bei systematischen Fehlern auf der Eingangs- und Ausgangsseite wird keine erhebliche Änderung der Konvergenz festgestellt. Der SA konvergiert gegen das Maximum, während der GA nur etwa 97% des Maximalwertes erreicht. Wird allerdings Rauschen auf die Ausgangsseite gesetzt und langsam erhöht, so scheitert der SA, während der GA weiterhin gegen etwa 95% des Maximalwertes konvergiert [164].

Besteht das Optimierungsproblem also aus wenigen Parametern (zum Beispiel drei) und ist das Rauschen nicht groß, so können sowohl *Simulated Annealing*-Algorithmen als auch Genetische Algorithmen bzw. Evolutionäre Strategien verwendet werden. SA-Algorithmen weisen dann eine schnellere Konvergenz und eine höhere Wahrscheinlichkeit hundertprozentiger Ausbeute auf. Wird der Parameterraum allerdings wie im Falle der freien Optimierung sehr groß (128 Optimierungsparameter) und nimmt das Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu, stellen Genetische Algorithmen bzw. Evolutionäre Strategien das Mittel der Wahl dar.

Simulated Annealing

Simulated Annealing wurde Mitte der fünfziger Jahre entwickelt [162, 165, 157] und lehnt sich eng an die Ideen der Thermodynamik und insbesondere der Kristallisation von Flüssigkeiten an (*annealing*= langsames Abkühlen). Wird die Temperatur einer Flüssigkeit langsam abgesenkt, so geht die Beweglichkeit der Moleküle verloren und ausgedehnte Einkristalle können gebildet werden. Dieser Zustand entspricht dem der minimalen Energie. Wird ein Metall allerdings „abgeschreckt“, so kann dieser Zustand nicht erreicht werden und es bildet sich ein amorpher Zustand höherer Energie. Durch langsames Abkühlen kann also die Konfiguration minimaler Energie erreicht werden. Die deterministischen Optimierungsalgorithmen gehören zu den „schnell abkühlenden“ Vorgängen. Vom Startpunkt aus bewegt man sich sofort in Richtung des nächstliegenden Minimums, welches allerdings häufig ein lokales Minimum ist. Die Natur optimiert effizienter. Die Boltzmann-Statistik beschreibt die Energieverteilung eines

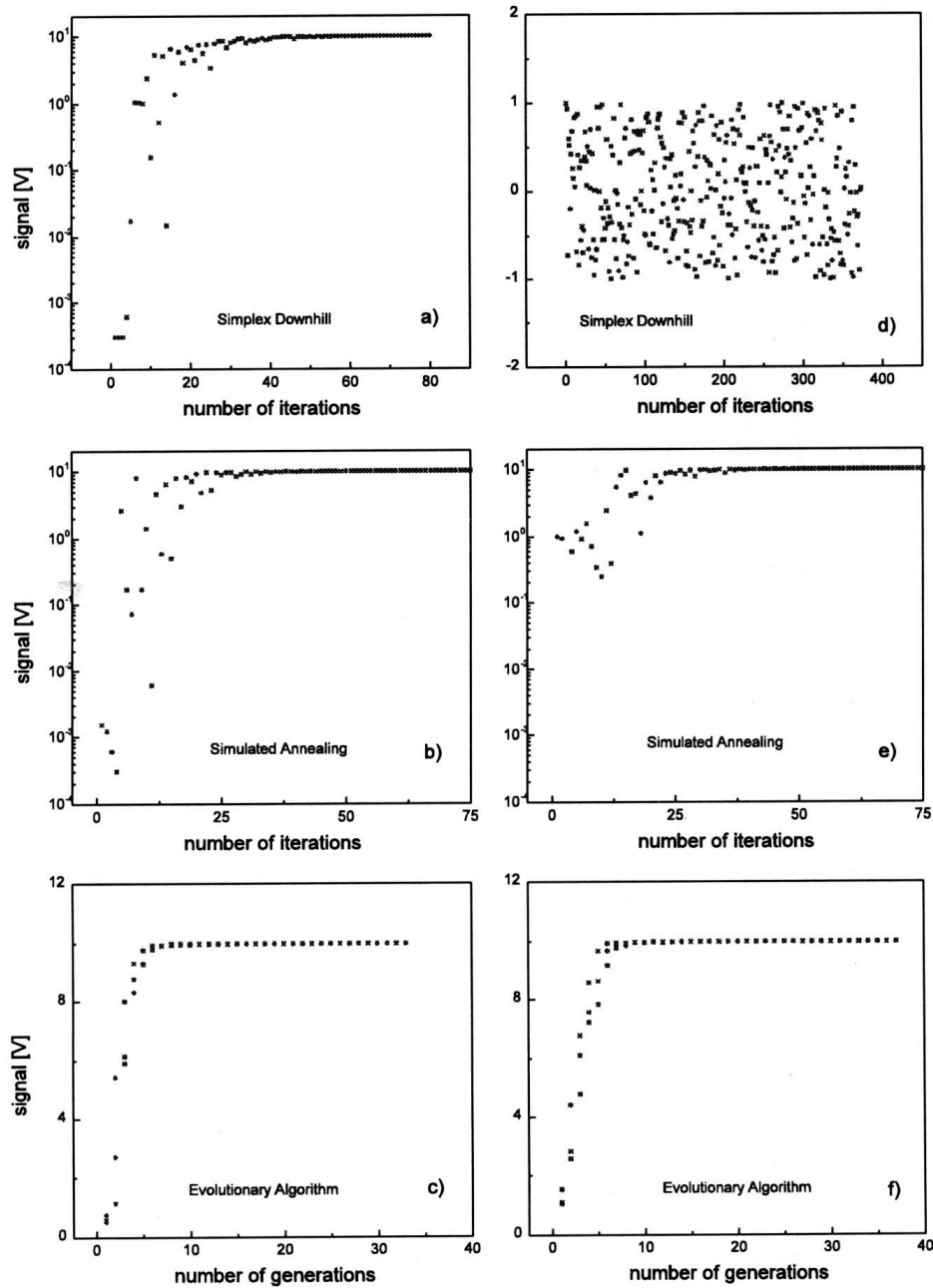


Abbildung 5.2: Simulation einer Drei-Parameter-Optimierung für einen Rauschpegel von 10% auf dem Feedback-Signal. Es werden drei verschiedene Optimierungsverfahren verglichen. Während alle Verfahren ohne Rauschen konvergieren (a-c), versagt der deterministische Simplex-Downhill-Algorithmus (d) bei Einschalten der Störung. Die nicht-deterministischen Verfahren Simulated Annealing (e) und Evolutionäre Algorithmen (f) konvergieren dagegen (aus [163]).

Systems. Es gibt auch bei niedrigen Temperaturen eine geringe Wahrscheinlichkeit, dass sich das System in einem hochangeregten Zustand befindet. Damit existiert eine gewisse Wahrscheinlichkeit, dass das System einem lokalen Minimum entkommen kann.

5.1.1 Genetische Algorithmen und Evolutionäre Strategien

Genetische Algorithmen (GA) und Evolutionäre Strategien (ES) sind nicht-deterministische Optimierungsverfahren, deren Konzepte der biologischen Evolutionstheorie entlehnt worden sind. Die wichtigsten Operatoren sind Mutation, *cross-over* und *survival of the fittest*. Die Evolutionären Strategien sind in den siebziger Jahren von Ingo Rechenberg [160] in Berlin entwickelt und von H.P. Schwefel [161] weiterentwickelt worden. Fast zeitgleich hat John Holland [158] in den USA die Genetischen Algorithmen erarbeitet, die von D.E. Goldberg weiterentwickelt wurden [159]. Während die ES von Beginn an die Lösung von technischen Problemen durch Anleihen bei der biologischen Evolutionstheorie zum Ziel hatten, stand bei der Entwicklung der GA's die Simulation der biologischen Evolution im Vordergrund [166]. Der entscheidende Unterschied der beiden Ansätze ist die Codierung der Parameter. Während bei den Genetischen Algorithmen die Codierung binär erfolgt, werden bei den Evolutionären Strategien die Parameter als Gleitkommazahlen codiert. Seit einigen Jahren wird an der Kombination der beiden Ansätze gearbeitet [167].

Das Grundkonzept von GA und ES basiert auf der biologischen Evolutionstheorie, nach der die Natur in vielen Fällen optimal an die Umgebung angepasste Lebensformen hervorgebracht hat. Danach können im Kampf ums Dasein innerhalb einer großen Population nur diejenigen Individuen überleben, die am besten den äußeren Bedingungen angepasst sind (*survival of the fittest*). Ihr Erbgut wird durch Mutation und Kreuzung leicht verändert an die nächste Generation weitergegeben, in der wiederum nur nur die überleben, die sich auf die Umwelt am besten eingestellt haben. Über Generationen hinweg führt die Auslese zu einer optimalen Anpassung an die äußeren Bedingungen, selbst wenn diese leichten Veränderungen unterworfen sind.

Im Folgenden wird die Vorgehensweise beschrieben: Zunächst wird eine Anfangspopulation aus Individuen gebildet, deren Erbgut aus Zufallszahlen besteht. Ein Individuum ist ein Satz von Optimierungsparametern. Die Anfangspopulation dient als Urgeneration zur Erzeugung von Nachkommen. Diese werden durch Mutation des Erbgutes und/oder durch Kreuzung von Paaren von Individuen erzeugt. Es entsteht die erste Generation. Setzt man die Parameter (Gene) jedes Individuums dieser Generation in die zu minimierende Funktion ein, so erhält man eine Bewertung. Damit wird jedem Individuum eine *fitness* zugewiesen. Diese *fitness* sagt aus, wie gut der jeweilige Lösungsvorschlag ist und bestimmt in einem nachgeschalteten Selektionsschritt die besten Individuen, die herausgefiltert und als Eltern für die Erzeugung neuer Nachkommen bereitgestellt werden. Auf diese Weise werden iterativ immer bessere Nachkommen erzeugt. Durch das Konzept der Population wird eine große Anzahl verschiedener Lösungsvorschläge angeboten und in die nächste Runde überführt. Damit kann sehr flexibel sowohl auf langsame Veränderungen der Zielfunktion als auch auf plötzliche kurze Sprünge reagiert werden. Hieraus resultiert das vergleichsweise robuste Verhalten der Evolutionären Algorithmen bei experimentellen Anwendung mit verrauschten Signalen.

Bei den **Genetischen Algorithmen** werden die Optimierungsparameter binär codiert. Die Individuen der Anfangspopulation werden gleich im ersten Schritt bewertet. Gemäß dem Heiratsschema werden geeignete Individuen aus der Generation ausgewählt, um Nachkommen durch geeignete Rekombinationschemata zu erzeugen. Ein Heiratsschema kann wie folgt

aussehen: Zunächst erfolgt eine Bewertung der einzelnen Individuen und eine Rangliste wird eingeführt. Danach werden zwei Individuen mit einer Wahrscheinlichkeit ausgewählt, die proportional zu ihrer Bewertung ist. Treibende Kraft der GA's sind die Rekombinationsschemata (*cross-over*), mit denen die Suchstrategie bestimmt wird. Es existieren viele verschiedene Rekombinationsschemata. Aus den beiden Binärsequenzen der Eltern-Individuen werden z.B. Nachkommen erzeugt, indem die Sequenzen an verschiedenen Stellen durchgeschnitten und abwechselnd umgeklappt werden. Mutationen werden vergleichsweise selten angewendet. An zufällig ausgewählten Stellen des binär codierten Erbguts der Nachkommen werden einzelne Bits umgeklappt, wobei die Wahrscheinlichkeit der Bit-Invertierung von dem jeweiligen Schema abhängt. Mutationen dienen bei Genetischen Algorithmen dazu, neues Erbgut in die Population zu bringen. Durch den Selektionsdruck wird die Population immer homogener. Die Konsequenz kann eine unerwünschte Konvergenz in einem lokalen Minimum sein. Die Mutation wirkt dem entgegen. Am Ende werden die Individuen der alten Generation durch die Nachkommen ersetzt. Auch die Ersetzungsschemata sind äußerst vielfältig und müssen dem konkreten Problem angepasst werden. Es reicht von der Ersetzung der gesamten Generation bis zum schwachen Elitismus, bei dem die n besten der alten Generation in mutierter Form übernommen werden.

Die **Evolutionären Strategien** (ES) codieren ihre Parameter durch reelle Fließkommazahlen. Ein Individuum wird als Vektor aus N reellen Zahlen (den Genen) dargestellt, wobei N die Anzahl der Optimierungsparameter ist. In Abbildung 5.3 ist schematisch eine Auswahl der möglichen Evolutionären Strategien skizziert. Die μ Anfangsindividuen werden in einen Pool gegeben, der die Anfangspopulation darstellt. Aus diesem Pool werden Duplikate für die Erzeugung der Nachkommen ausgewählt, wobei im Gegensatz zu den GA die Auswahl rein statistisch erfolgt. Diese Duplikate können drei unterschiedliche Wege durchlaufen:

- Beim **Crossover** werden die beiden Duplikate eines Paares rekombiniert, indem die Gene einer nach dem anderen entweder zufällig ausgetauscht oder belassen werden. Im Anschluss werden entweder die beiden rekombinierten Individuen mitgeführt, oder ein Individuum kann zufällig ausgewählt und entfernt werden. Ein weiteres Crossover-Verfahren besteht darin, die Gene mehrerer Duplikate aufzuaddieren und den Mittelwert als Gen in das neue Individuum einzutragen.

Die Kreuzung spielt bei den ES eine untergeordnete Rolle und erfüllt den Zweck, neues Erbgut in die Population zu bringen. Auch hier kommt es aufgrund des Selektionsdrucks zu einer Homogenisierung der Population. Die Kreuzungen verhindern das frühzeitige Konvergieren in lokalen Minima.

- Das Erbgut der Duplikate wird einer **Mutation** unterzogen, die daraus besteht, dass auf jedes Gen eines Duplikates eine Zufallszahl $n(\sigma)$ addiert oder davon abgezogen wird. Die Zufallszahlen $n(\sigma)$ sind normalverteilt um Null mit einer Verteilungsbreite σ , die Mutationsschrittweite genannt wird. Die Mutationsschrittweite σ ist für die globale Konvergenz des Algorithmus' entscheidend. Der Optimierungsverlauf der jeweiligen ES wird entscheidend von den Mutationen bestimmt. Sie bilden die Suchstrategie und sorgen für die Konvergenz. Dafür muss die Mutationsschrittweite σ während der Optimierung angepasst werden (*adaptive Schrittweitenanpassung*). In welcher Form dies geschieht, hängt vom konkreten Optimierungsproblem ab. Zwei Verfahren der mutativen Schrittweitenanpassung werden vorgestellt, die für den Optimierungsalgorithmus der vorliegenden Arbeit getestet wurden.

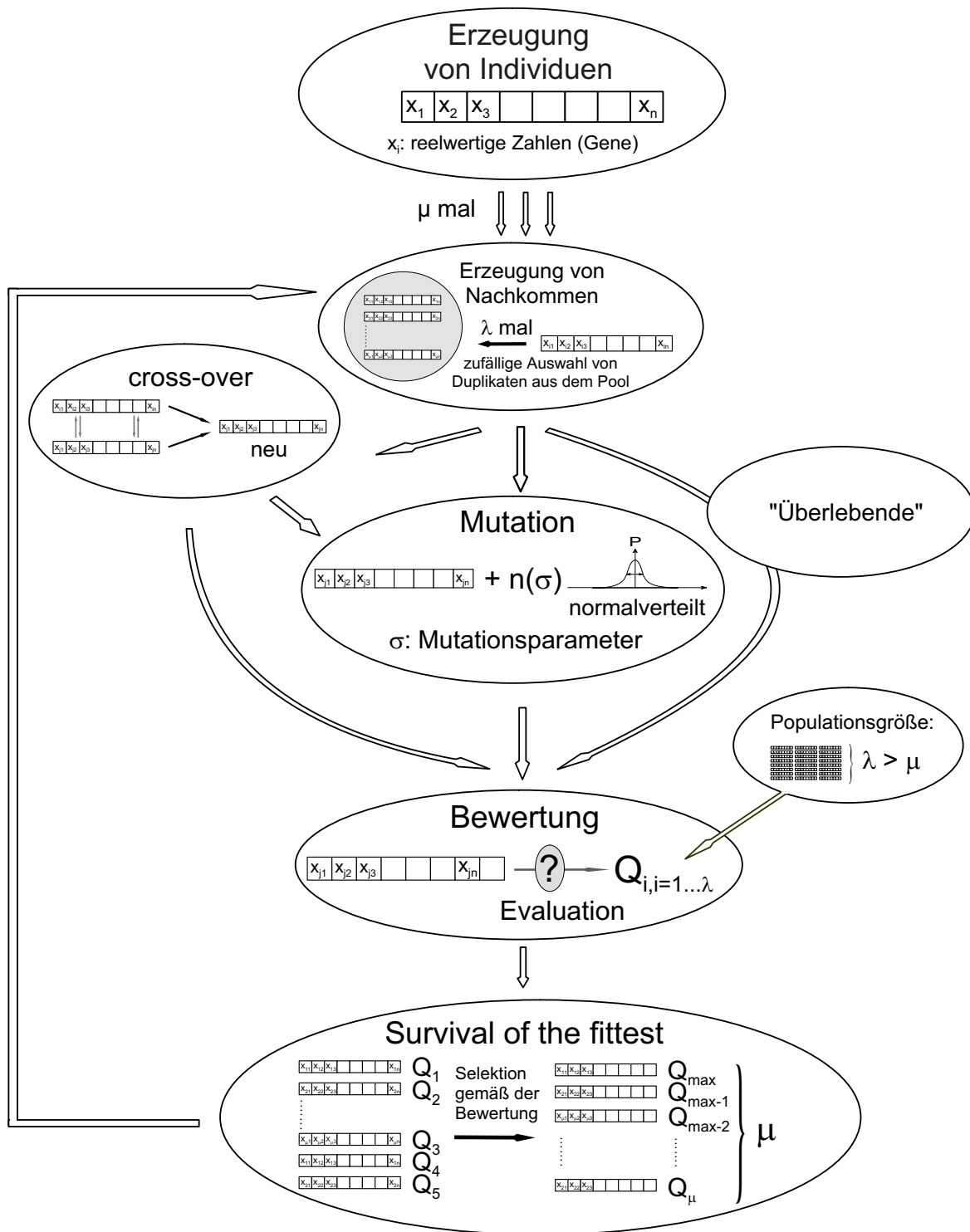


Abbildung 5.3: Fließdiagramm einer Auswahl von Evolutionären Strategien. Die Individuen werden als reellwertige Vektoren dargestellt. Aus dem μ Anfangsindividuen umfassenden Pool werden Duplikate erzeugt und durch Kreuzung und Mutation zum Nachwuchs der neuen Generation entwickelt. Diese beiden Operatoren können beide durchlaufen werden. Je nach Strategie kann ein Individuum auch nur einen oder keinen Operator (sogenannte „Überlebende“ oder „Elitisten“) durchlaufen. Die somit geschaffene Population umfasst λ Individuen. Nach der Bewertung werden die μ besten Individuen ausgewählt und als Eltern für die neue Generation verwendet. Neben den Operatoren ist der Selektionsdruck $s = \lambda/\mu$ eine wichtige Regelgröße für die Konvergenz.

1. Bei der **Selbstoptimierung** der Mutationsschrittweite wird die Mutationsschrittweite selbst Objekt der Evolution (siehe Abbildung 5.4). Den Individuen wird ein weiteres Array angehängt, das aus den Schrittweiten σ_i der einzelnen Gene besteht. Diese Tupel stellen nun die Individuen dar. Während das Crossover-Schema identisch bleibt, verläuft die Mutation für die neuen Individuen nach den Vorschriften [166]

$$\sigma_{neu} = \sigma_{alt} \cdot e^{n(0,\delta)} \quad (5.1)$$

$$x_{neu} = x_{alt} + n(0, \sigma_{neu}). \quad (5.2)$$

Die Exponentialfunktion sorgt dafür, dass die Änderungen von σ klein sind und σ nicht negativ wird. Die Breite δ ist üblicherweise kleiner als σ und wird während der Optimierung nicht verändert.

2. Die $\frac{1}{5}$ -**Erfolgsregel** passt die Mutationsschrittweite nach dem Erfolg der Mutation in einer Generation an [160]. Ist der Quotient aus erfolgreich mutierten Individuen zu verschlechterten Individuen in einer Generation größer als $\frac{1}{5}$, sollte die Streuung durch die Mutation in der nächsten Generation erhöht werden. Die Mutationsschrittweite σ wird also vergrößert. Ist der Quotient kleiner als $\frac{1}{5}$, muss σ verringert werden. Der in der Literatur angegebene Mindesterfolg $\frac{1}{5}$ [160] ist lediglich ein Anhaltspunkt; je nach Problemstellung können leichte Abweichungen zur Verbesserung der Konvergenzeigenschaft führen. Die Bedeutung der $\frac{1}{5}$ -Erfolgsregel liegt darin, dass man sich bei Mutationserfolg in einem Gebiet des Suchraums befindet, in dem Fortschritte wahrscheinlicher sind. Da dann der richtige Weg eingeschlagen ist, können größere Schritte unternommen werden. Im negativen Fall sollte in kleineren Schritten gesucht werden, um die Erfolgswahrscheinlichkeit wieder zu erhöhen. Mit welchen Schrittweiten die Vergrößerung bzw. Verkleinerung von σ vorgenommen wird, muss im Einzelfall entschieden werden.

Die meisten ES unterziehen die Mehrzahl der Duplikate sowohl der Kreuzung als auch der Mutation. Die restlichen werden an der Kreuzung vorbei direkt mutiert oder "überleben"komplett.

- Die Individuen müssen auf ihre neue Qualität überprüft werden. Die **Bewertung** der Individuen erfolgt durch einen Vergleich mit der Zielfunktion, wobei die Bewertung umso besser ist, je geringer die Differenz ausfällt. Es können auch andere Bewertungen vorgenommen werden. Im Falle der experimentellen Optimierung wird die erzielte Intensität eines Signals als Bewertungsgrundlage genommen. Je besser die Bewertung des einzelnen Individuums ausfällt, desto größer ist seine fitness. Werden bei den sogenannten (μ, λ) -ES nur die gekreuzten und mutierten Individuen bewertet, so können zum Beispiel bei den sogenannten $(\mu + \lambda)$ -ES auch die Eltern zusammen mit dem Nachwuchs zur Prüfung zugelassen werden.
- Im letzten Schritt findet die Auswahl derjenigen Individuen statt, die als Eltern für die Erzeugung der neuen Generation gebraucht werden. Gemäß dem *Survival of the fittest* werden die μ Individuen mit der besten Bewertung, d.h. der größten *fitness* ausgewählt. Alle anderen Individuen werden vernachlässigt.

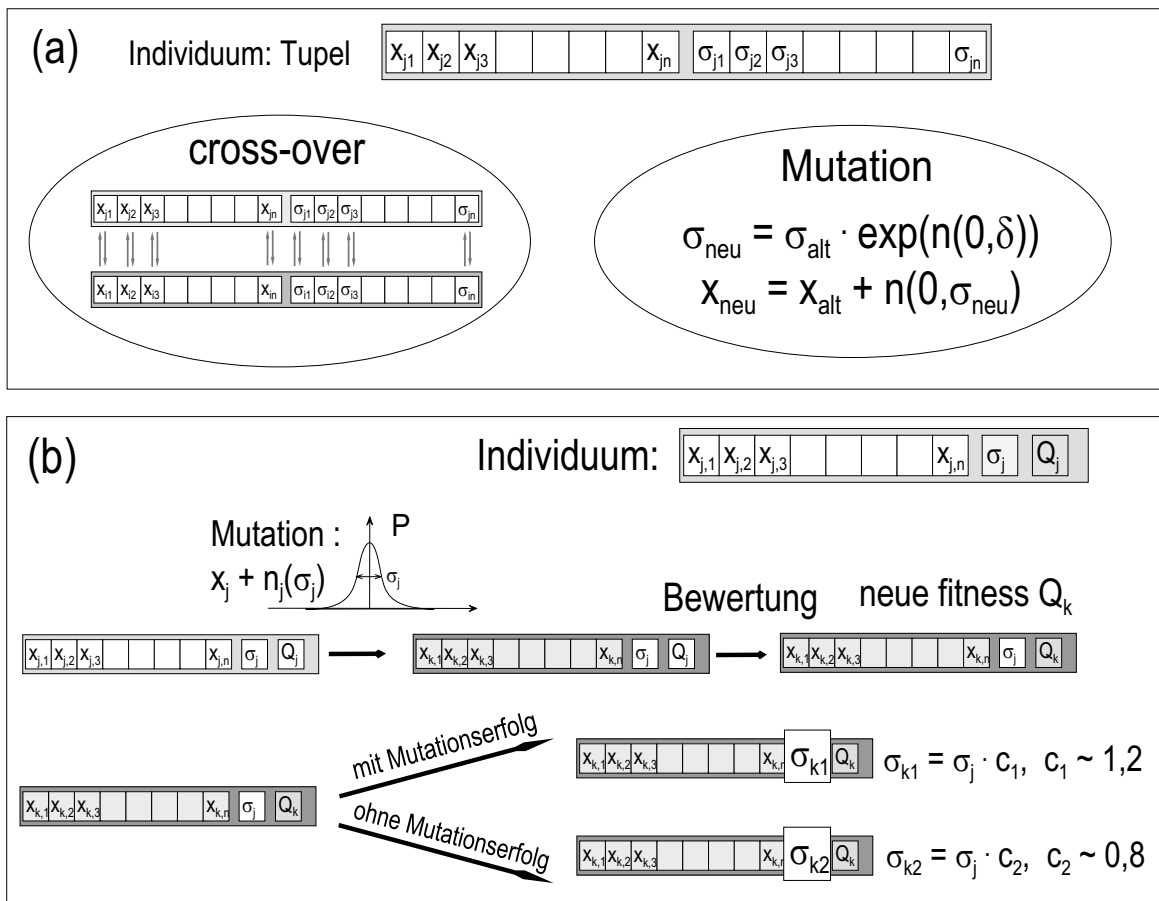


Abbildung 5.4: Zwei Schemata zur adaptiven Anpassung der mutativen Schrittweite σ bei Evolutionären Strategien. Die mutative Schrittweite σ ist die Breite der normalverteilten Zufallszahlen $n(0, \sigma)$ um Null, die bei der Mutation auf die Werte der Gene addiert werden. Die adaptive Anpassung von σ regelt die Suchstrategie. (a): Adaptive Steuerung der Mutationsschrittweite σ , die selbst Objekt der Evolution wird. (b): 1/5-Erfolgsregel: Nach Mutation und Bewertung wird der Erfolg der Mutation festgestellt. Ist der Erfolg für die gesamte Population $> 20\%$, wird die Mutationsschrittweite vergrößert, andernfalls verringert.

Das Verhältnis aus Populationsgröße λ und der Anzahl der Überlebenden μ wird Selektionsdruck $s = \frac{\lambda}{\mu}$ genannt. Der richtige Selektionsdruck ist stark von dem konkreten Optimierungsproblem abhängig.

Die Frage, welcher der beiden Ansätze für eine konkrete Problemlösung geeigneter ist, kann nicht pauschal beantwortet werden. Beide Verfahren arbeiten mit Populationen möglicher Lösungen und selektieren aussichtsreiche Kandidaten gemäß ihrer *fitness*, um auf deren Basis neue, bessere Populationen potentieller Lösungen zu erzeugen. Die Verbesserungen werden in kleinen Schritten vorgenommen und ein frühzeitiges Konvergieren wird durch neues Erbgut verhindert ("aufschütteln"). Es werden nur Vorschläge für die Suchrichtung gegeben, d. h. eine frühzeitige Festlegung der Suchrichtung wird vermieden. Durch die Kombination von diesen Eigenschaften ist in einer besonderen Weise die Fähigkeit entstanden, die in diesem Experiment benötigt wird. In einer idealen Weise können hochkomplexe Suchräume mit vielen Parametern auch dann global abgesucht werden, wenn verrauschte Signale und andere

Störquellen keine konstanten Bedingungen zulassen. Ein wesentlicher Unterschied zwischen den beiden Verfahren ES und GA besteht in der Codierung der Individuen. Für eine konkrete Anwendung muss daher zunächst entschieden werden, welche Codierung der potentiellen Lösungen sinnvoller ist. Auf diese Weise kann die Entscheidung sehr praktisch ausfallen. Eine klar binäre Problemrepräsentation zum Beispiel würde für den Einsatz von Genetischen Algorithmen sprechen. Wir haben uns aufgrund der Reellwertigkeit der Lösungsrepräsentation ($0 - 2\pi$ respektive $0 - 1$) für eine Fließkomma-Codierung und damit für die Evolutionären Strategien entschieden. Allerdings wurden einzelne Aspekte aus dem Bereich der Genetischen Algorithmen hinzugenommen.

5.2 Die Rückkopplungsschleife

Die rückkopplungsgesteuerte Optimierung von fs-Pulsen wird mit nicht-deterministischen Optimierungsalgorithmen betrieben. Die fitness ist durch die Größe des experimentellen Mess-Signals bzw. durch eine Funktion aus mehreren Meßsignalen [7, 168] gegeben. Im vorliegenden Falle wird die Intensität des entsprechenden Ionensignals verwendet. Es sind auch rein optische Optimierungsaufgaben vorstellbar, wie z.B. die Rekomprimierung dispersionsverbreiteter fs-Pulse. In diesem Fall ist die Feedback-Größe die Intensität der zweiten Harmonischen (SHG) der Grundwelle. Die Pulsrekompprimierung eignet sich hervorragend als Test der Methode, da sowohl die Zielfunktion eindeutig als auch eine theoretische Simulation der Optimierung möglich ist. Im folgenden soll die Vorgehensweise der experimentellen Rückkopplungsoptimierung erläutert werden.

5.2.1 Implementation der adaptiven Rückkopplungsschleife

Als Ansatz des Optimierungsalgorithmus wurden die Evolutionären Strategien (ES) gewählt (siehe Abschnitt 5.1.1). Das Prinzip des Optimierungsexperiments ist schematisch in Abbildung 5.5 dargestellt. Der Optimierungsalgorithmus erzeugt in einem Initialisierungsschritt eine sogenannte Anfangspopulation. Diese besteht aus zehn (allgemein μ) Individuen. Jedes Individuum ist ein Array aus 128 bzw. 256 Fließkommazahlen, die die Phasenwerte bzw. die Phasen- und Amplitudenwerte des Modulators repräsentieren. Alle Zahlen der Arrays nehmen Werte zwischen 0 und 1 an. Bevor die Zahlenarrays in Steuerspannungswerte des Modulators umgerechnet werden, müssen die Werte der die Phase bestimmenden Einträge mit 2π multipliziert werden. Jedes Individuum bedeutet also eine komplette Modulatoreinstellung und erzeugt nach dem Beschreiben des Modulators eine bestimmte Pulsform. In den meisten Fällen ist eine reine Phasenmodulation ausreichend (128 Optimierungsparameter).

Die Individuen der Anfangspopulation bestehen aus Zufallszahlen. Eine Abfolge von zufällig verteilten Phasen- und Amplitudenwerten bedeutet eine unstrukturierte und zeitlich ausgedehnte Pulsform. Von den zehn Individuen der Anfangspopulation werden zufällig zwei Individuen ausgesucht und rekombiniert. Die Rekombination erfolgt durch cross-over, indem für jede Position der Arrays zufällig entschieden wird, ob die Eintragungen getauscht werden oder nicht (siehe Abschnitt 5.1.1). Diese Prozedur wird 15 mal wiederholt, so dass eine Population aus 30 Individuen entsteht. Jedes Individuum wird in einem anschließenden Mutationsverfahren in seinem Wert geringfügig verändert. Dazu wird eine gaußverteilte Zufallszahl addiert. Die Breite der Gaußverteilung ist die sogenannte Mutationsschrittweite σ . Der Anfangswert der Mutationsschrittweite beträgt $\sigma_0 = 0.003$ und damit drei Promille des Maximalwerts. Die Mutationsschrittweite wird in einer adaptiven Schrittweitenanpassung über

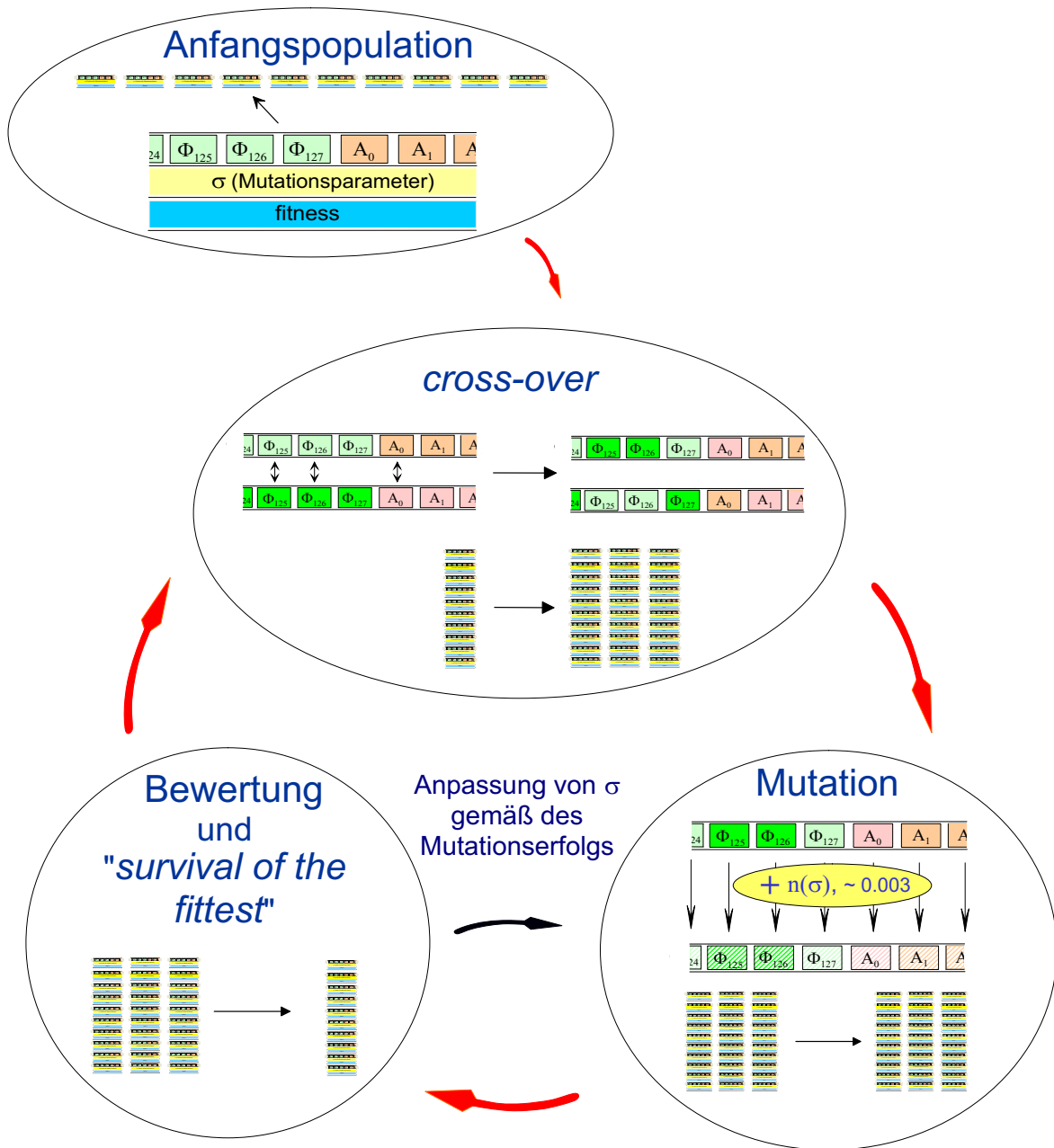


Abbildung 5.5: Schematische Darstellung der adaptiven Feedback-Optimierung von fs-Pulsen mit Evolutionären Strategien. Eine Anfangspopulation aus 10 zufälligen Einstellungssätzen (Individuen) des Pulsformers wird zunächst erzeugt. Ein Einstellungssatz beinhaltet 128 Phasen und/oder 128 Transmissionswerte des spektralen Feldes. Die Individuen werden rekombiniert und mutiert, und anschließend auf den Pulsformer geschrieben. Das experimentelle Resultat der erzeugten Pulsform bestimmt die Qualität (fitness) des Individuums. Die neue Generation wird aus den besten 10 Individuen der vorhergehenden Generation gebildet.

die Generationen dem jeweiligen Optimierungsstand angepasst. Im Anschluss an die Mutation werden die Individuen in Spannungswerte des LCD-Modulators umgerechnet und auf den Modulator geschrieben. Nachdem die Spannungen des Modulators gesetzt sind, sollten etwa 200 ms gewartet werden, bis die Flüssigkristallmoleküle ausgerichtet sind.

Der Laserstrahl wird in die Wechselwirkungszone mit dem Molekularstrahl fokussiert, woraufhin es zu einer Photofragmentation und Photoionisation der Moleküle kommt. Jede Pulsform erzeugt ein spezielles Ionensignal, dessen Intensität ein Maß für die Güte der Pulsform ist und somit die fitness des Individuums bestimmt. Durch die am Experiment vorgenommene Bewertung können die besten 10 Individuen herausgefiltert werden und als Grundlage für die Erzeugung einer neuen Generation dienen.

Die Suchstrategie wird durch den Mutationsoperator bestimmt. Die Mutationsschrittweite σ muss während der Optimierung angepasst werden (siehe Abschnitt 5.1.1). Dazu wird die Erfolgsrate einer Mutationsschrittweite in einer Generation betrachtet. Ist der Erfolg der Mutationen innerhalb einer Generation über 20%, so wird die Schrittweite mit 1.22 multipliziert und damit vergrößert. Im negativen Fall muss σ verkleinert und mit 0.8 multipliziert werden. Üblicherweise steigt σ zu Beginn der Optimierung an und fällt ab dem Wendepunkt der Optimierungstrajektorie ab.

5.3 Parametrische Optimierung

Bisher bestand der Parameterraum aus den 128 Phasenwerten ψ_i ($i = 1, \dots, 128$) des Flüssigkristall-Modulators. Der Algorithmus kann jede Kombination dieser Parameter finden, wobei Werte zwischen $\psi_i = 0$ und $\psi_i = 2\pi$ mit einer Auflösung von $1 \cdot 10^{-3}$ angenommen werden können. Ebenso kann der Parameterraum aus den 128 Amplitudenwerten oder den kombinierten 256 Phasen- und Amplitudenwerten bestehen. Diese Optimierung nutzt eine quasi-freie Bestimmung der spektralen Phase aus, die lediglich durch die Diskretisierung in 128 Stützpunkte begrenzt ist. Eine Optimierung, die die optimale Phasenfunktion unter diesen Bedingungen frei findet, nennen wir **freie Optimierung**.

Der Suchprozess kann durch die Einengung des Suchraums beschleunigt werden. Zum Beispiel kann man lediglich gewisse Lösungsklassen zulassen und das Optimum innerhalb des reduzierten Raumes suchen. Ein geeigneter Ansatz ist die Beschreibung der Phasenmodulation durch analytische Funktionen, deren Funktionsparameter optimiert werden. Ein solches Verfahren wird **Parametrische Optimierung** genannt [169]. Das Ergebnis ist von der Wahl der Lösungsklasse abhängig und sollte daher physikalisch motiviert werden. Eine für die Optimierungsaufgabe geeignete Parametrisierung lässt sich zum Beispiel durch theoretische Vorhersagen des steuernden Laserfeldes finden, indem eine geeignete Einengungen des Suchraums eine Sensibilisierung auf den vorhergesagten Optimierungsprozess zur Folge hat. So sind viele verschiedene Parametrisierungen denkbar, die zusammengenommen einen großen Teil des allgemeinen Suchraums abdecken können [170].

Es sind mehrere Vorteile der Parametrisierung erkennbar:

- Zum einen kann eine Optimierung sehr viel schneller und damit eine Steuerung sehr viel einfacher vorgenommen werden, da lediglich eine kleine Anzahl freier Parameter variiert werden muss.
- Die Parametrisierung bietet die Möglichkeit der kontinuierlichen Variation einzelner Parameter, um den Einfluss auf das Optimierungsergebnis zu vermessen. Ebenso können

multidimensionale Abhängigkeiten des Wechselwirkungsprozesses parametrisch vermessen werden. Ein Beispiel für zwei Parameter wird in Abschnitt 8.2.5 gegeben.

- Die freie Optimierung führt in vielen Fällen zu komplex strukturierten und nicht intuitiv verständlichen Pulsformen. Dies liegt an der Komplexität des optimierten Wechselwirkungsprozesses. Allerdings existieren oftmals auch einfachere Prozesse [171], die eine geeignete Parametrisierung finden kann. Zudem tragen nicht notwendigerweise alle Komponenten des frei optimierten spektralen Feldes zum Steuerungsprozess bei [171]. Eine geeignete Parametrisierung kann durch die Reduktion der Pulskomplexität zu einem besseren Verständnis der optimierten Pulsformen führen. In Kapitel 6.5 werden Ergebnisse vorgestellt.

Entsprechend der historisch entstandenen dichotomischen Trennung kohärenter Kontroll-Schemata in eine Frequenzraum- und eine Zeitraumdarstellung (siehe Kapitel 2.2), können auch die Parametrisierungen der *Optimal Control*-Experimente klassifiziert werden: Die Frequenzraum-Parametrisierung gibt geeignete Funktionen der spektralen Phasen- und Amplitudenmodulation vor. Dagegen wird durch die Parametrisierung im Zeitraum das zeitliche Feld des geformten Pulses beschrieben. Je nach Problemstellung ist die eine oder die andere Repräsentierung geeignet. Mitunter können dieselben Parametrisierungen sowohl im Zeit- als auch im Frequenzbild motiviert werden, je nach dem konkreten Steuerungsproblem. Die sinusförmige Phasenmodulation stellt eine solchen Parametrisierung dar (siehe Kapitel 6.5). In der vorliegenden Arbeit werden sowohl Frequenzraum- als auch Zeitraumparametrisierungen angewendet.

5.4 Adaptive Rekompensation von fs-Pulsen

In diesem Kapitel wird eine rein optische Anwendung der Rückkopplungsoptimierung vorgestellt: die adaptive Rekompensation eines dispersionsverbreiterten fs-Pulses. Es wird dargestellt, wie hiermit eine ideale Testmethode für die implementierte Rückkopplungsschleife gegeben ist. Die Verkürzung der Optimierungszeit mit Hilfe geeigneter Parametrisierungen wird erläutert.

Durchläuft ein fs-Puls ein Medium mit dem Brechungsindex $n(\omega)$, so kommt es aufgrund der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) in dem Medium zu einer zeitlichen Verbreiterung des Pulses. Diese dispersive Phasenmodulation führt zu einem Chirp, der für Pulse moderater spektraler Breite im wesentlichen linear ist, d.h. allein durch den quadratischen Phasenterm b_2 bestimmt² wird (siehe Abschnitt 4.1.2). Der dispersiv erzeugte lineare Chirp ist im sichtbaren Spektralbereich immer positiv. Wie in Abschnitt 4.1.2 weiterhin erläutert, bedient man sich für gewöhnlich zur Rekompensation dispersionsverbreiteter fs-Pulse Prismen- und Gitteranordnungen, mit denen dispersionskompensierender negativer Chirp erzeugt werden kann. Mit Hilfe des Abstands der Gitter oder Prismen kann die richtige Größe des Chirp gefunden werden. Mit der hier vorgestellten Methode wird die Rekompensation durch die Kompensation der dispersiven Phasenverschiebung erreicht, indem die negative spektrale Phasenverschiebung als Modulationsfunktion an den Pulsformer angelegt wird. Die benötigte Phasenfunktion wird dabei adaptiv mit Hilfe der Rückkopplungsschleife gefunden. Erstmals haben Silberberg und Mitarbeiter die Rekompensation mit Hilfe der adaptiven Feedback-Schleife demonstriert [172]. Baumert et al. haben fast zeitgleich ein vergleichbares Experi-

²Je breiter das Spektrum wird, umso mehr spielt auch die kubische Phasenverschiebung eine Rolle. Diese muss bei sehr kurzen Pulsen mit Pulsdauern unter $\Delta t = 5$ fs berücksichtigt werden.

ment beschrieben [173], in dem verstärkte dispersiv verbreiterte Pulse auf die transformlimitierte Mindestlänge rekomprimiert wurden. Durch diese Methode können zum Beispiel die kurzen Pulse automatisierten am Ort des Experiments rekomprimiert werden. Diese Anwendung ist besonders wichtig für komplex verbreiterte Pulse, die beispielsweise aus einem CPA-Verstärkersystem³ [174, 175] oder einem nichtkollinearen OPA (NOPA= *Non-collinear Optical Parametrical Amplifier*) stammen [176]. Solche Pulse weisen meist eine zeitliche Verbreiterung durch Phasenverschiebungen zweiter, dritter und höherer Ordnungen auf, die mit reinen Gitter- oder Prismenkompressoren nur unvollständig komprimierbar sind. Die Pulsverbreiterung durch die Dispersion eines Glases kann berechnet werden. Damit ist auch die zur Rekompresseion benötigte Phasenfunktion bekannt. Die Rekompresseion eignet sich somit besonders gut als Testmethode für die Funktionsweise der adaptiven Rückkopplungsschleife.

5.4.1 Dispersionsverbreiterung durch einen SF 57-Stab

In den Strahlengang des Lasers vor oder nach dem Pulsformer wird ein 50 mm langer Glasstab aus hochdispersivem SF 57 Glas gestellt (Abbildung 5.6 a). Mit einem BBO-Kristall wird der Puls frequenzverdoppelt und mittels Filtern und speziell für die UV-Reflexion beschichteten Spiegeln von der Grundwellenlänge getrennt. Die Intensität des UV-Lichts wird mit einem Photomultiplier gemessen (Abbildung 5.6 b).

Die Gesamtausbeute des frequenzverdoppelten UV-Lichts kann als Feedback-Signal für die Optimierung genutzt werden, denn sie ist ein Maß für die Pulsdauer; je kürzer der Puls, desto größer ist die Ausbeute an UV-Licht. Denn die Intensität des frequenzverdoppelten Pulses $I_{SHG}(t)$ hängt quadratisch von der Intensität der Grundwelle $I_G(t)$ ab. Damit ist die Gesamtausbeute an UV-Licht $\int_{-\infty}^{+\infty} I_{SHG}(t)dt \sim \int_{-\infty}^{+\infty} I_G^2(t)dt = \int_{-\infty}^{+\infty} E_G(t)^4 dt$. Da die Gesamtenergie des Fundamentalpulses $\int_{-\infty}^{+\infty} E_G(t)^2 dt$ konstant bleibt, wird die SHG-Ausbeute um so größer, je kürzer der Puls ist.

Abbildung 5.7 zeigt die XFROG-Spur, d.h. die spektral aufgelöste Kreuzkorrelation des Pulses nach dem Durchgang durch den SF 57-Glasstab (siehe Abschnitt 4.3.4). Da sich das Maximum der Kreuzkorrelation mit zunehmender Wellenlänge linear zu früheren Zeiten verschiebt, handelt es sich um einen Puls mit einem linearen *up-chirp*. Aus der Steigung der Verzögerungskurve $\tau(\omega)$ kann mit Gleichung 4.82 der Chirp mit $b_2^{dispers} = 11300 \text{ fs}^2$ angegeben werden (siehe auch Abschnitt 4.1.2).

Mit Hilfe der Sellmeier-Koeffizienten [177] lässt sich der Brechungsindex $n(\lambda)$ des SF57 Glases berechnen. Aus den Gleichungen 4.10 und 4.20 bestimmt sich dann der Chirp des Pulses nach Durchgang durch 50 mm dieses Glases bei $\lambda_0 = 770 \text{ nm}$ zu $b_2^{theor} = 11800 \text{ fs}^2$. Die Abweichung der theoretischen und experimentellen Ergebnisse beträgt 4.3%. Die simulierte Kreuzkorrelation ergibt eine zeitliche Länge (FWHM) von $\Delta t_{cc}^{theor} = 328 \text{ fs}$. Die gemessene Kreuzkorrelationsbreite beträgt $\Delta t_{cc} = 322 \text{ fs}$ (Abweichung 2%).

Der derart verlängerter Puls erzeugt nur eine niedrige SHG-Intensität, die in Abbildung 5.8 einem kleinen negativen Wert von b_2^{mod} entspricht. Hier bestimmt b_2^{mod} den durch den Pulsformer angelegten linearen Chirp, der den dispersiven Chirp kompensieren soll. Für negative Werte des b_2^{mod} steigt die Intensität des UV-Lichts an. Das Maximum wird bei $b_2^{mod} \approx -11700 \text{ fs}^2$ erreicht. Zu absolut kleineren Werten des b_2^{mod} fällt das Signal wieder ab. Auch über $b_2^{mod} = 0$ hinaus wird ein leichter Abfall des Signals beobachtet.

³CPA= *Chirped Pulse Amplification*. Die zu verstärkenden Pulse werden über eine dem Gitter-und-Linsen-Kompressor ähnliche Anordnung auseinandergezogen und nach der Verstärkung rekomprimiert.

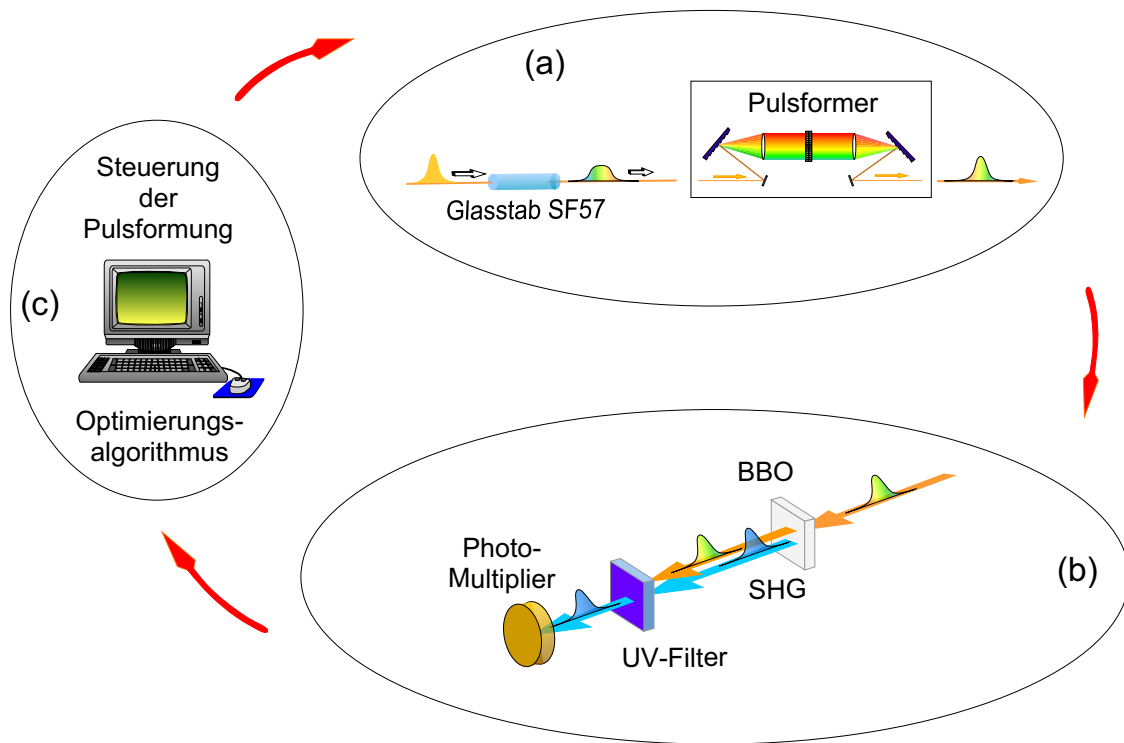


Abbildung 5.6: Schematische Darstellung der adaptiven Rekompresseion eines dispersionsverbreiterten fs-Pulses. (a): Der Puls wird durch einen Glasstab und anschließend durch den Pulsformer geleitet. (b): Der geformte Puls wird mit einem BBO-Kristall frequenzverdoppelt. Die Intensität des frequenzverdoppelten Lichts (blauer Puls) wird in Abhängigkeit von der durch den Pulsformer erzeugten Pulsform der Fundamentalwellenlänge mit einem Photo-Multiplier gemessen. (c): Ein Optimierungsalgorithmus steuert den Pulsformer iterativ. Als Feedback dient die UV-Intensität, gemessen am Multiplier.

Dass dem Anstieg der SHG-Intensität eine Verkürzung der Pulsdauer entspricht, kann der Abbildung 5.9 entnommen werden. Es sind die Kreuzkorrelationsbreiten für Pulse zwischen $b_{2,min}^{mod} = -5000 \text{ fs}^2$ und $b_{2,max}^{mod} = -17000 \text{ fs}^2$ aufgetragen. Das Minimum befindet sich bei $b_2^{mod,0} = -11600 \text{ fs}^2$. Einige Kreuzkorrelationen der Pulse sind in einem Abstand von $\Delta b_2^{mod} = 1200 \text{ fs}^2$ eingezeichnet.

Die Kreuzkorrelationsbreite des kürzesten Pulses bei $b_2^{mod,0} = -11600 \text{ fs}^2$ beträgt $\Delta t = 122 \text{ fs}$ und ist damit sogar etwas kleiner als die Autokorrelationsbreite des Referenzpulses von $\Delta t_{ac} = 125 \text{ fs}$ (siehe Kapitel 3.2). Die zeitliche Verbreiterung des Pulses aufgrund der Dispersion konnte also durch das Anlegen einer quadratischen negativen Phasenverschiebung kompensiert werden.

5.4.2 Rekompresseion durch freie Optimierung

Der dispersionsverbreiterte gechirpte Puls kann automatisiert durch die freie Optimierung re-komprimiert werden. Als Feedback-Größe dient die Intensität des SHG-Signals. Die optimierte Kombination der Phasenwerte entspricht der benötigten Phasenfunktion, die die durch die Dispersion erzeugte Phasenverschiebung des spektralen Feldes ausgleicht. Wie bereits erwähnt,

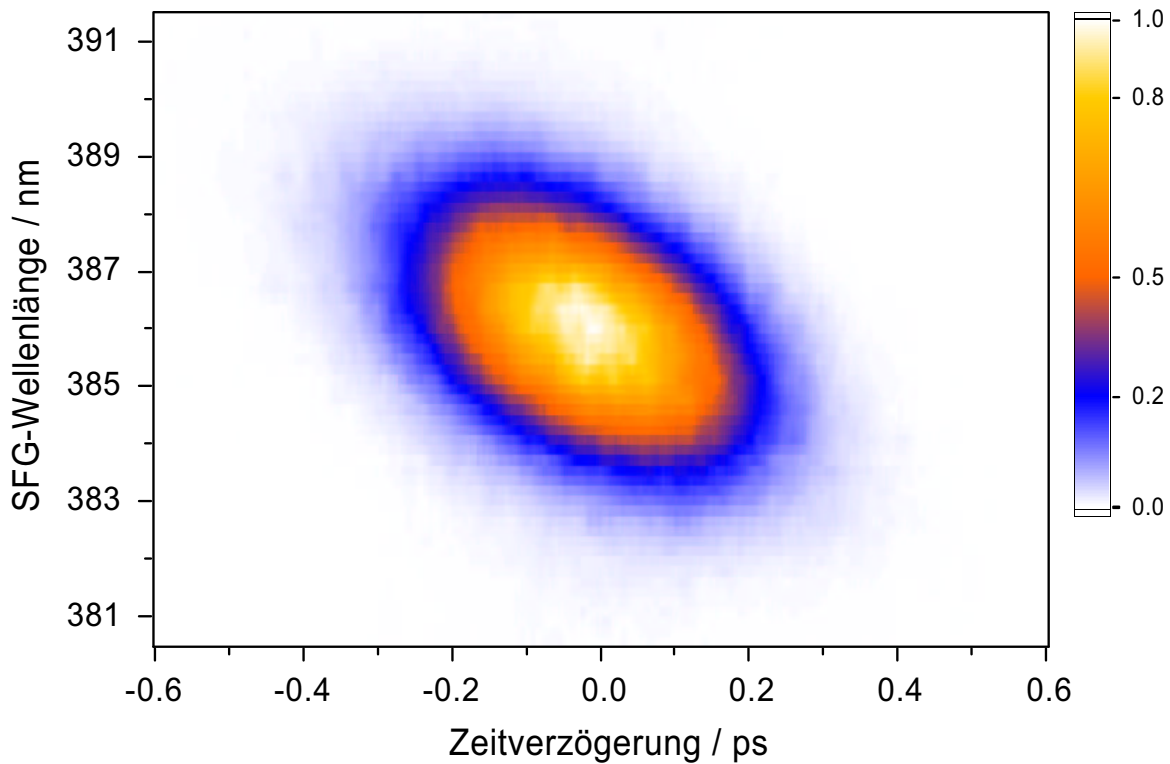


Abbildung 5.7: XFROG-Spur eines dispersionsverbreiterten fs-Pulses nach Durchgang durch 50 mm SF 57-Glas. Der Puls ist linear positiv gec chirpt mit $b_2^{dispers} = 11300 \text{ fs}^2$.

stellt diese Methode eine Testmöglichkeit für die experimentelle Rückkopplungsschleife dar, da die Zielfunktion bekannt ist.

Simulation

Die Simulation der adaptiven Rekompresseion ist hilfreich, um den Algorithmus für die experimentelle Aufgabe zu optimieren. So kann entschieden werden, mit welchen Strategien und welchen Werten der Optimierungsparameter eine schnelle Konvergenz erzielt wird.

Die Simulation wird mit Gaußpulsen (Gleichung 4.16) durchgeführt. Die Dispersion des SF57 Glases führt mit Hilfe von Gleichung 4.10 zu einem linear gec chirpten Gaußpuls. Nach einer Fouriertransformation wird das spektrale Feld $\tilde{E}_{in}(\omega)$ mit der Modulationsfunktion des Modulators $\tilde{M}(\omega)$ multipliziert (zur Simulation der Pulsformung siehe Abschnitt 4.4):

$$\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{M}(\omega) \cdot \tilde{E}_{in}(\omega) \quad (5.3)$$

Nach der komplexen Rücktransformation $FT^{-1}\{\tilde{E}_{out}(\omega)\}$ wird die Intensität $I(t) = E_{out}^2(t)$ quadriert, um den quadratischen Prozess der Frequenzverdopplung zu simulieren. Die Größe $\int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t)dt$ dient als Feedback für den Evolutionären Algorithmus. Mit dem vom Algorithmus vorgegebenen Array der 128 unabhängigen Phasenwerte wird die diskrete Funktion $\tilde{M}(x)$, $x \in (0, \dots, 128)$ ermittelt. Über die räumliche Gitterdispersion des Null-Dispersions-Kompessors kann gemäß Gleichung 4.33 und 4.59 die Modulationsfunktion $\tilde{M}(\omega)$ berechnet

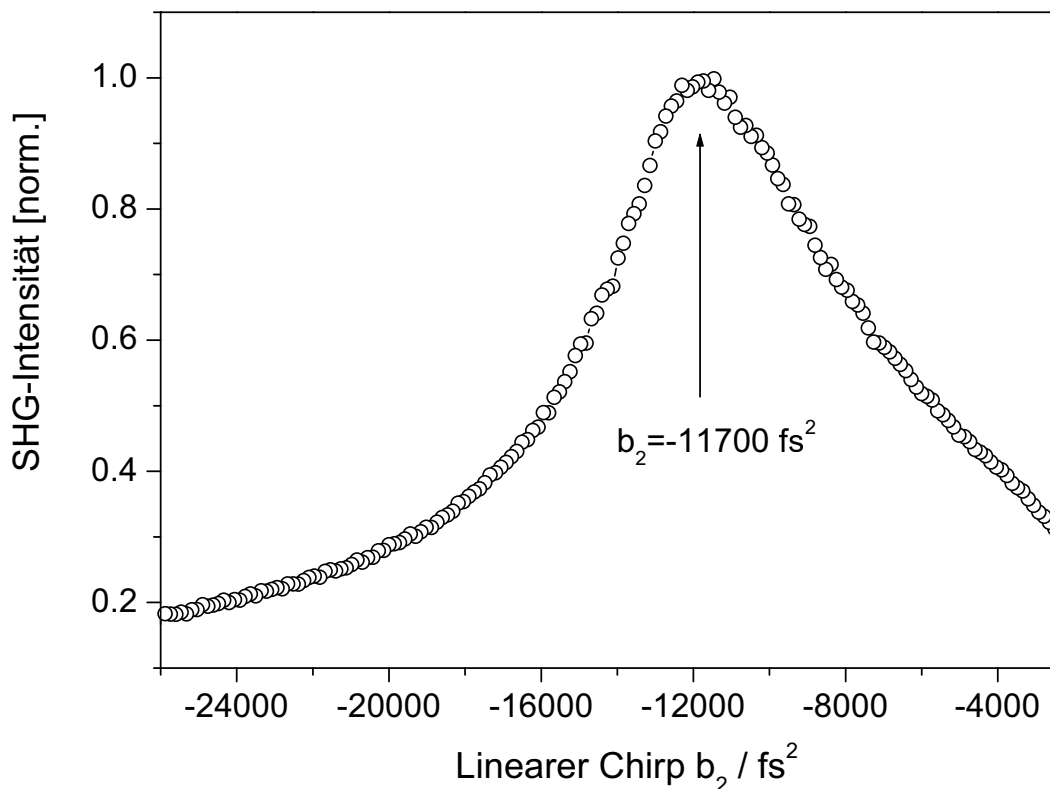


Abbildung 5.8: SHG-Intensität in Abhängigkeit vom linearen Chirp $b_2 = \frac{d^2\psi}{d\omega^2}|_{\omega_0}$, der den Chirp eines dispersionsverbreiterten fs-Puls kompensiert. Rekompensation wird für $b_2 = 11700 \text{ fs}^2$ erreicht.

werden. Die Simulation ergibt, dass bestmögliche Konvergenz durch die in Abbildung 5.5 dargestellte Strategie erhalten wird. Dabei führt die Mutationsstrategie der 1/5-Erfolgsregel schneller zur Konvergenz als die adaptive Schrittweiten-Anpassung. Ein weiterer Mutationsoperator (*mutation-next*) wird eingefügt, der berücksichtigt, dass die gesuchte Phasenfunktion glatt ist. Dabei wird der Wert eines zufällig ausgewählten Gens jedes Individuums auf eines seiner Nachbargene überschrieben, wobei der Wert durch die Multiplikation mit dem Parameter n leicht verändert wird. Es wurden folgende Parameter als optimal für die freie Optimierung der Pulsrekompensation ermittelt:

λ	μ	κ_0	c_1	c_2	n
30	10	0.25	1.22	0.82	0.95

Tabelle 5.1: Optimale Werte der Optimierungsparameter des Evolutionären Algorithmus für die freie Optimierung. Die Werte sind mit Hilfe der Simulation der adaptiven Rekompensation ermittelt worden.

Die Anzahl der Individuen in einer Population beträgt $\lambda = 30$ und die Anzahl der selektierten Individuen beträgt $\mu = 10$. Der Mutationsparameter κ_0 , der den Erfolg einer Mutation pro Generation bemisst, wird auf 0.25 eingestellt. Bleibt der Erfolg unter κ_0 , wird die Mutationsschrittweite gemäß $\sigma_{neu} = \sigma_{alt} \cdot c_2$, $c_2 = 0.82$ verkleinert. Bei einem Erfolg größer

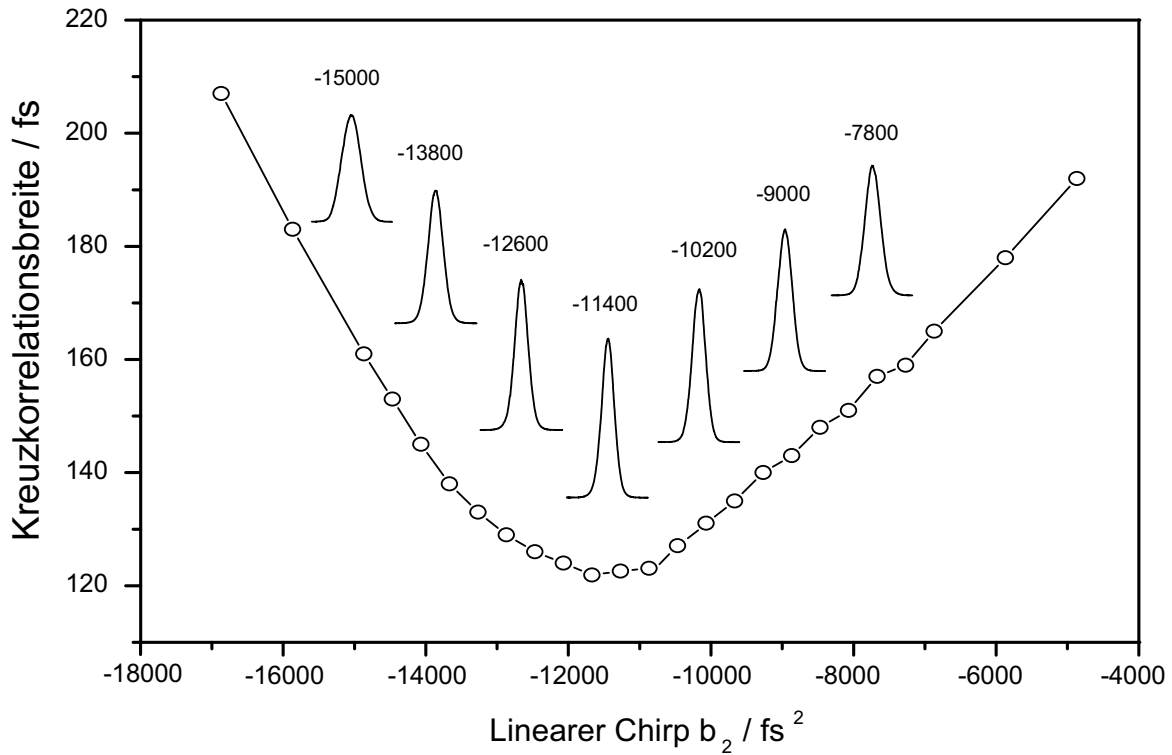


Abbildung 5.9: Kreuzkorrelationsbreiten dispersionsverbreiteter Pulse, die durch den Pulsformer rekompriert werden. Der Chirp des Pulsformers wird zwischen $b_{2,min} = -5000 \text{ fs}^2$ und $b_{2,max} = -17000 \text{ fs}^2$ variiert. Der kürzeste Puls wird für $b_2^0 = -11600 \text{ fs}^2$ erhalten. Eingezeichnet sind ebenso ausgewählte Kreuzkorrelationen der Pulse, die in Schritten von $\Delta b_2 = 1200 \text{ fs}^2$ zwischen $b_2 = -7800 \text{ fs}^2$ und $b_2 = -15000 \text{ fs}^2$ variiert werden.

κ_0 wird $\sigma_{neu} = \sigma_{alt} \cdot c_1$, $c_1 = 1.22$ vergrößert. Die Mutationsschrittweite beträgt zu Beginn $\sigma = 0.003$. Der *mutation-next*-Operator erzielt das beste Ergebnis mit dem Wert $n=0.95$. Alle Parameter-Werte sind in Tabelle 5.1 zusammengestellt.

Experiment

Die adaptive Rekompresseion wird mit den in Tabelle 5.1 aufgelisteten Werten der Optimierungsparameter durchgeführt. Zu Beginn der Optimierung ist die SHG-Ausbeute sehr gering, da die Anfangspopulation aus zufälligen Phasenwerten besteht. Mit fortlaufender Iteration steigt die Intensität an und konvergiert nach etwa 130 Generationen.

In der Abbildung 5.10 (a) ist der Anstieg des besten Individuums jeder Generation für verschiedene Optimierungsmessungen aufgetragen. Während die Trajektorien unterschiedlich verlaufen können, ist das am Ende erzielte SHG-Signal für alle Optimierungsläufe nahezu identisch. Der Algorithmus übernimmt das jeweils beste Individuum jeder Generation vollständig ohne Mutation und *cross-over*. Dennoch kommt es vereinzelt zu Rückgängen der jeweils in der Generation erzielten Maximalintensität, die auf Signalrauschen und Laserfluktuationen zurückzuführen sind. In Abbildung 5.10 (b) ist dem jeweils besten noch das schlechteste Individuum und der Mittelwert aller Individuen jeder Generation hinzugefügt worden. Während

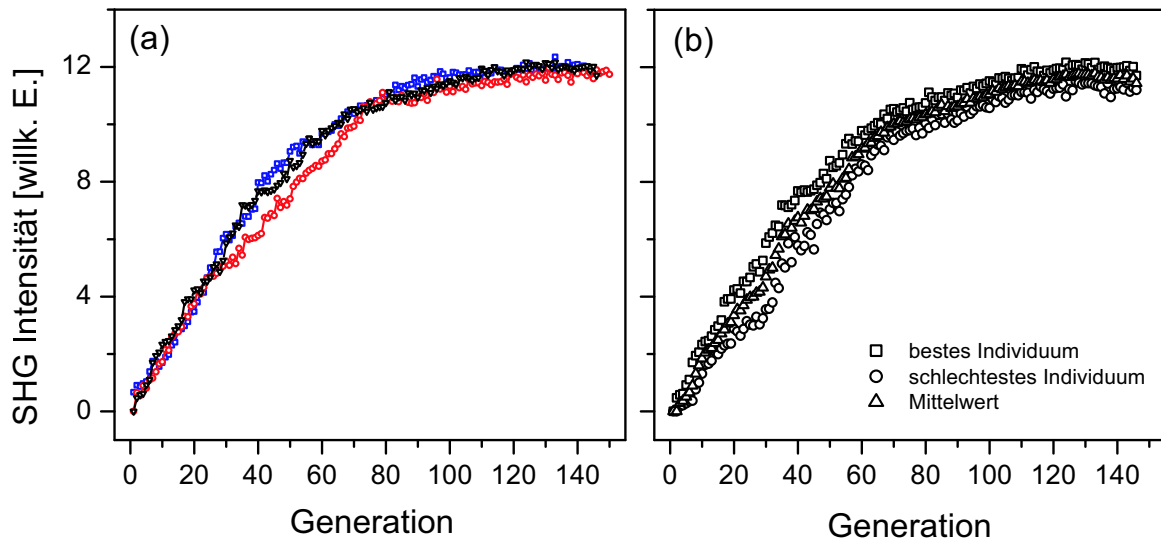


Abbildung 5.10: (a): Evolution der SHG-Optimierung. Eingezeichnet ist die fitness der besten Individuen jeder Generation für drei unterschiedliche Optimierungsexperimente. (b): Für jede Optimierung sind zusätzlich zum besten Individuum sowohl die fitness des schlechtesten Individuums jeder Generation als auch der Mittelwert der fitness aller Individuen dargestellt.

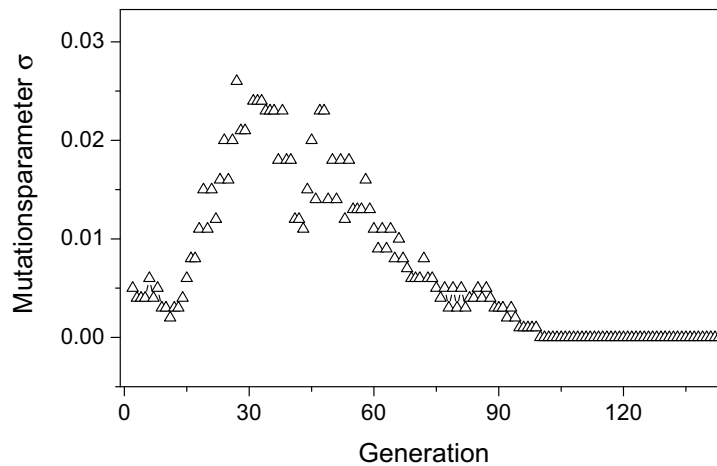


Abbildung 5.11: Der Mutationsparameter σ steigt während der Optimierung zunächst steil an, um im Wendepunkt der Optimierungstrajektorie das Maximum zu erreichen und danach abzufallen.

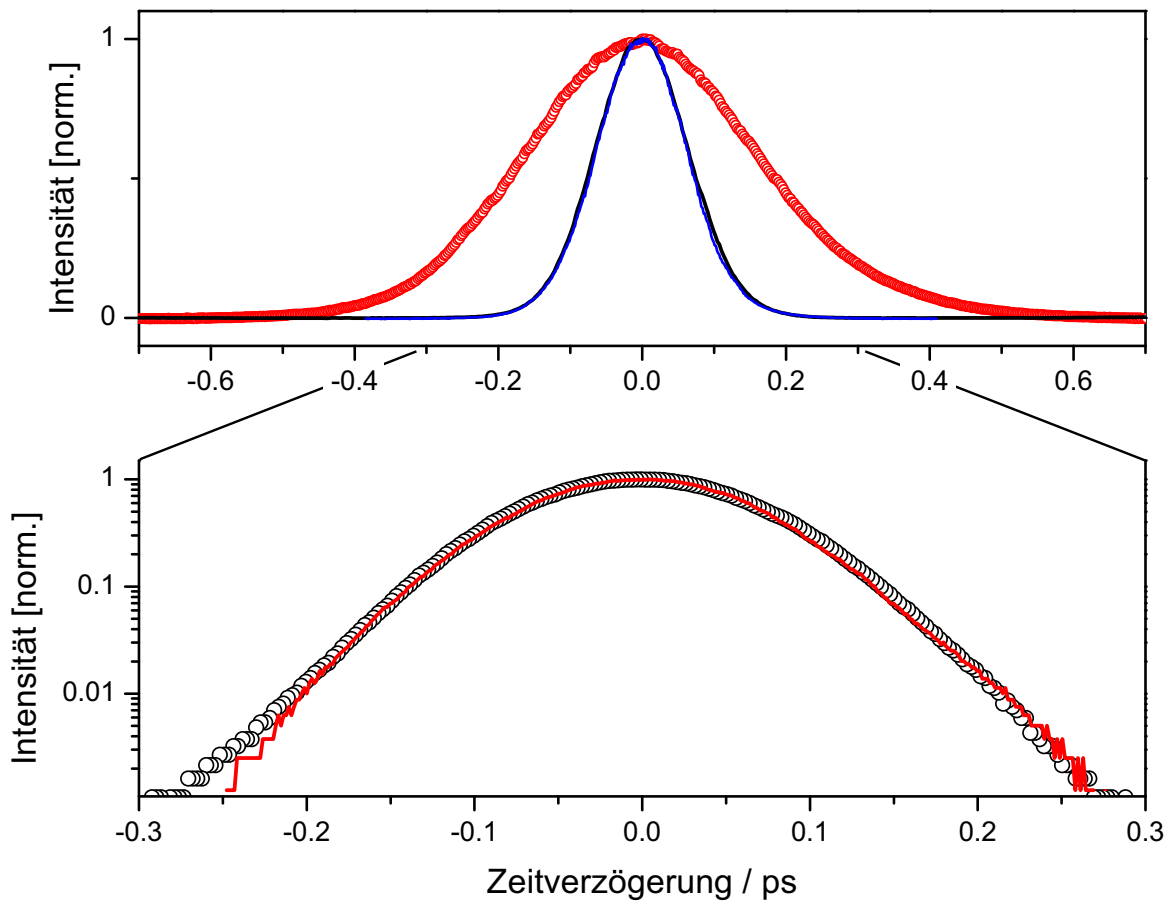


Abbildung 5.12: Intensitäts-Kreuzkorrelationen der Pulse vor und nach der adaptiven Rekompresion. Oben: Dispersionsverbreiteter Puls nach dem Durchgang durch 50 mm SF 57-Glas (Kreise) und rekonprimierter Puls durch adaptive SHG-Optimierung (durchgezogene Linie). Unten: Die Abweichung zwischen dem Referenzpuls (Kreise) und dem rekonprimierten Puls (durchgezogen) ist sehr gering. Die Pulslänge (FWHM) des rekonprimierten Pulses ist 3% größer als die des Referenzpulses. Die Intensität ist logarithmisch aufgetragen.

die Güte für alle Individuen zunimmt, bleibt die Streuung innerhalb der Generation bestehen und schnürt sich erst zusammen, wenn der Algorithmus konvergiert.

Wird der Verlauf des Mutationsparameters σ während der Optimierung betrachtet, so stellt man ein Maximum im Bereich des Wendepunktes bzw. größten Anstiegs der *fitness* fest. Abbildung 5.11 zeigt die Entwicklung von σ über die Generationen. Nach dem Anfangswert von $\sigma_0 = 5 \cdot 10^{-3}$ und einem leichten Abfall steigt σ ab Generation 10 steil an. Dieser Anstieg bedeutet, dass der Mutationserfolg einer Generation konstant größer als $\frac{1}{4}$ ist. Bei etwa Generation 30 ist ein scharfes Maximum erreicht, wobei sich der Wert von σ um einen Faktor 10 erhöht hat. Danach fällt σ kontinuierlich ab. Die Generation von σ_{max} fällt mit dem Wendepunkt der Optimierungstrajektorie zusammen. Der Weg in Richtung des globalen Maximums des multidimensionalen Suchraums ist gefunden und eingeschlagen worden. Die Mutationsschrittweite wird um so größer, je steiler der Anstieg ist. Dabei wird jeweils über eine ganze Generation gemittelt, um den Suchraum weiterhin auf andere Maxima (mittels

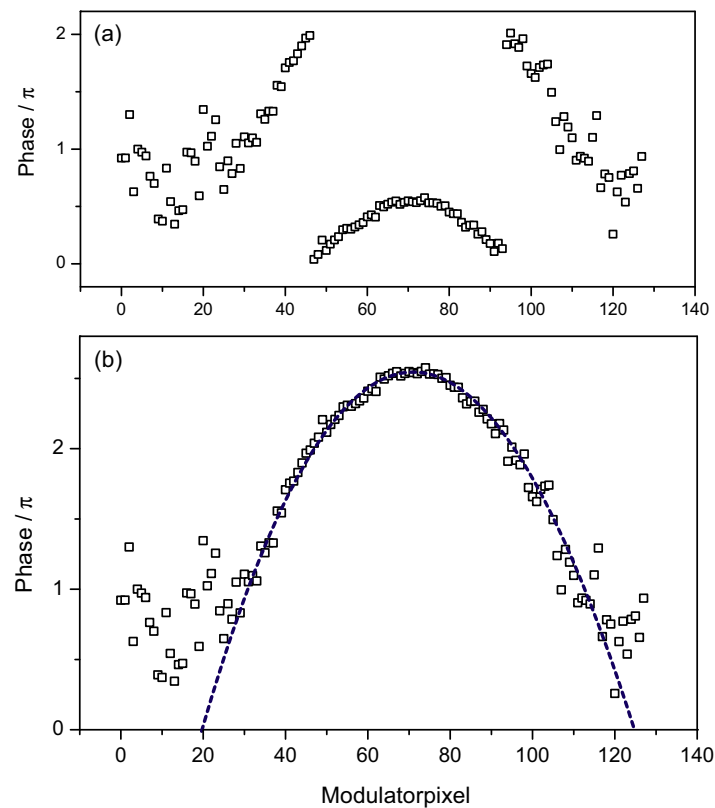


Abbildung 5.13: (a): Phasenmuster der adaptiven Rekompresseion des SF57-Glasstabes. (b): Nach Faltung der Phase an den 2π -Sprüngen (phase wrapping) ergibt sich ein quadratischer Verlauf. Der Vergleich mit dem errechneten Phasenverlauf (gestrichelt) zeigt gute Übereinstimmung.

cross-over) abzustasten. Ist die Richtung des globalen Maximums gefunden, kann sich ihm angenähert werden. Dabei wird die Schrittweite der Mutation zurückgefahren.

Ergebnis

Nachdem der Optimierungsalgorithmus konvergiert ist und maximale SHG-Ausbeute erzielt wurde, kann der optimale Puls mittels Intensitäts-Kreuzkorrelation vermessen werden. Die Abbildung 5.12 zeigt im oberen Teilbild einen Vergleich der Pulse vor und nach der Optimierung. Gegenüber dem dispersionsverbreiterten Puls mit einer zeitlichen Kreuzkorrelationsbreite von $\Delta t = 322$ fs ist der optimierte Puls deutlich verkürzt worden. Die Kreuzkorrelationsbreite des rekomprierten Pulses beträgt $\Delta t = 129$ fs.

Im unteren Teilbild sind zum besseren Vergleich rekomprierteter Puls (Kreise) und Referenzpuls (gestrichelte Linie) logarithmisch aufgetragen. Mit einer zeitlichen Breite von $\Delta t = 129$ fs ist der optimierte Puls 4 fs breiter als der Referenzpuls. Damit wurde der dispersionsverbreiterte Puls fast vollständig mit einer Abweichung von 3% rekompriert.

Der Algorithmus optimiert nur Phasenwerte zwischen 0 und 2π . Zu Beginn der Optimierung sind diese 128 Werte statistisch gleichverteilt, am Ende zeigt das Phasenmuster einen stückweise glatten Verlauf (Abbildung 5.13 a). Da die Phasenfunktion über $\Delta\phi = 2\pi$ hinausgeht, treten Phasensprünge auf. Klappt man die Phase an den Sprüngen um 2π zurück

(*phase wrapping*), so ergibt sich im zentralen Bereich des Musters ein glatter negativ quadratischer Verlauf (Abbildung 5.13 b). Ein Vergleich mit dem theoretisch zu erwartenden Verlauf zeigt gute Übereinstimmung (gestrichelte Kurve). Dieser wurde aus dem maximale SHG-Ausbeute ergebenden quadratischen Phasenparameter b_2^{mod} (Abbildung 5.8) errechnet. Die Seitenbereiche weichen stark von einer regelmäßigen Struktur ab. Die Anzahl der mittleren, den glatten Verlauf bildenden Pixel beträgt etwa 70. Diese Zahl entspricht der durch das Spektrum ausgeleuchteten Pixelanzahl. Denn aufgrund der Gitter- und Linsenkombination des Null-Dispersions-Kompressors (siehe Abschnitt 4.2.2) entspricht die Fensterbreite des Modulators bei der spektralen Breite von $\Delta\lambda = 8$ nm der fünffachen Halbwertsbreite. Ab etwa der dreieinhalbfachen Halbwertsbreite einer gaußförmigen Spektralverteilung ist allerdings die Intensität so gering, dass der Beitrag keine Rolle mehr spielt. Damit haben die Phasenwerte der etwa 30 äußeren Pixel auf beiden Seiten keinen Einfluss auf die Pulsformung, die Phasen können willkürliche Werte annehmen, und das Phasenmuster weicht vom quadratischen Verlauf ab.

5.4.3 Rekompresseion durch parametrische Optimierung

Im Falle der SHG-Optimierung ist die gesuchte Phasenfunktion bekannt. Es ist eine weitgehend quadratische Funktion, mit geringen Beiträgen von dritter und vierter Ordnung. Es kann somit der Suchraum bedeutend eingeschränkt und eine Parametrisierung der Phasenfunktion vorgenommen werden (siehe Kapitel 5.3): Die Phasenfunktion wird in eine Taylorreihe

$$\psi(x) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} b_n (x - x_0)^n \quad (5.4)$$

entwickelt, wobei $x \in (0, \dots, 128)$ die Pixelnummer und $x_0 = 64$ den mittleren Pixel angibt. Als Optimierungsparameter stehen somit die Taylorkoeffizienten b_n (Einheit fs^n) zur Verfügung. Konstanter und linearer Phasenfaktor bleiben ohne Einfluss auf die Pulsform (siehe Abschnitt 4.1.2), somit kann man sich hier auf die Taylorkoeffizienten der zweiten, dritten und vierten Ordnung b_2, b_3, b_4 beschränken.

Simulation

Im Vorfeld wird der Einsatz der Evolutionären Strategien für die parametrisierte Optimierung getestet. Dazu durchläuft ein simulierter gaußförmiger Eingangspuls eine dispersive Strecke von 30 mm SF10-Glas. Zunächst wird der Einfluss des Selektionsdrucks $s = \frac{\lambda}{\mu}$ auf die Konvergenzeigenschaften untersucht. Für eine Populationsgröße von $\lambda = 18$ wird fast vollständige Rekompresseion (99.8 %) nach sieben bis neun Generationen erreicht ($s = 1.8 - 3$). Im Gegensatz dazu erreicht der Algorithmus bei einer Populationsgröße von $\lambda = 30$ bereits nach drei bis fünf Generationen die vollständige Rekompresseion, die allerdings auf einen Selektionsdruck zwischen $s = 4.35$ und $s = 2.5$ begrenzt bleibt.

Experiment und Ergebnisse

Damit kann der Selektionsdruck von $s = 3$ beibehalten werden, d.h. es werden die zehn besten Individuen einer aus 30 Individuen bestehenden Population ausgesucht. Ein „Elitist“ wird ohne Mutation und *cross-over* übernommen. Der Mutationsparameter zeigt zwischen

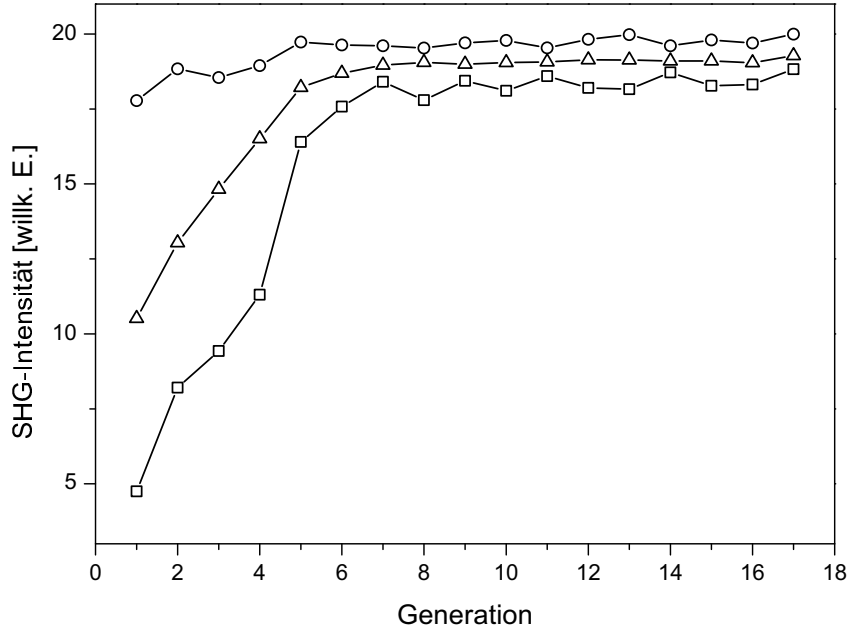


Abbildung 5.14: Entwicklung der parametrisierten Optimierung der SHG-Ausbeute. Optimierungsparameter sind die Taylorkoeffizienten der zweiten bis vierten Ordnung der Phase.

$\sigma = 2 \cdot 10^1$ und $\sigma = 2 \cdot 10^2$ die besten Resultate. Anfangswerte, die weit außerhalb dieses Fensters liegen, führen zu keiner zufriedenstellenden Konvergenz.

Im Gegensatz zur freien Optimierung wird Konvergenz bereits nach fünf bis zehn Generationen erzielt (siehe Abbildung 5.14). Dies entspricht bei einer Dauer von rund 20 s pro Generation einer mittleren Optimierungszeit von zwei bis drei Minuten! Die Simulation zeigt, dass bei einer weiteren Einengung des Suchraums, indem z.B. nur negative Werte für b_2 , b_3 und b_4 zugelassen werden, der optimale Wert schon nach ein bis zwei Generationen gefunden werden kann. Aus Abbildung 5.14 ist ersichtlich, dass der Algorithmus bereits nach der ersten Generation in die Nähe des Optimums vorgedrungen ist. Während die schlechteste Phase der ersten Generation lediglich 24% der optimalen Intensität erreicht, und der Mittelwert bei 50% liegt, erzielt das beste Individuum der ersten Generation bereits 90%.

Die Kreuzkorrelationen der rekomprimierten Pulse zeigen eine Streuung der Breiten zwischen $\Delta t = 123$ fs und $\Delta t = 138$ fs. Im Mittel wurde $\Delta t = 133$ fs erzielt. Dies ergibt gegenüber dem Referenzpuls mit $\Delta t = 125$ fs einen Fehler von 6.4%. In Abbildung 5.15 ist ein typisches Ergebnis ($\Delta t = 133$ fs) gegen den Referenzpuls aufgetragen. Als Referenzpuls dient der freie Puls nach Durchlaufen des auf 0 Phase eingestellten Pulsformers.

Der kürzeste Puls der parametrischen Optimierung besitzt eine gegenüber dem Referenzpuls um 2 fs kleinere Kreuzkorrelationsbreite. Er wird bei Anlegen einer Kombination von negativ quadratischer Phase mit einem geringen Anteil positiver dritter und vierter Ordnung erreicht. In vielen Ergebnissen sind mindestens zwei Parameter negativ. In allen Fällen überwiegt der quadratische Phasenfaktor deutlich und ist immer negativ. Es wird keine Lösung mit rein quadratischer Phase gefunden. In Abbildung 5.15 (a) sind Resultate der Phasenmuster nach verschiedenen Durchläufen aufgetragen. Im Vergleich zur freien Optimierung ergibt

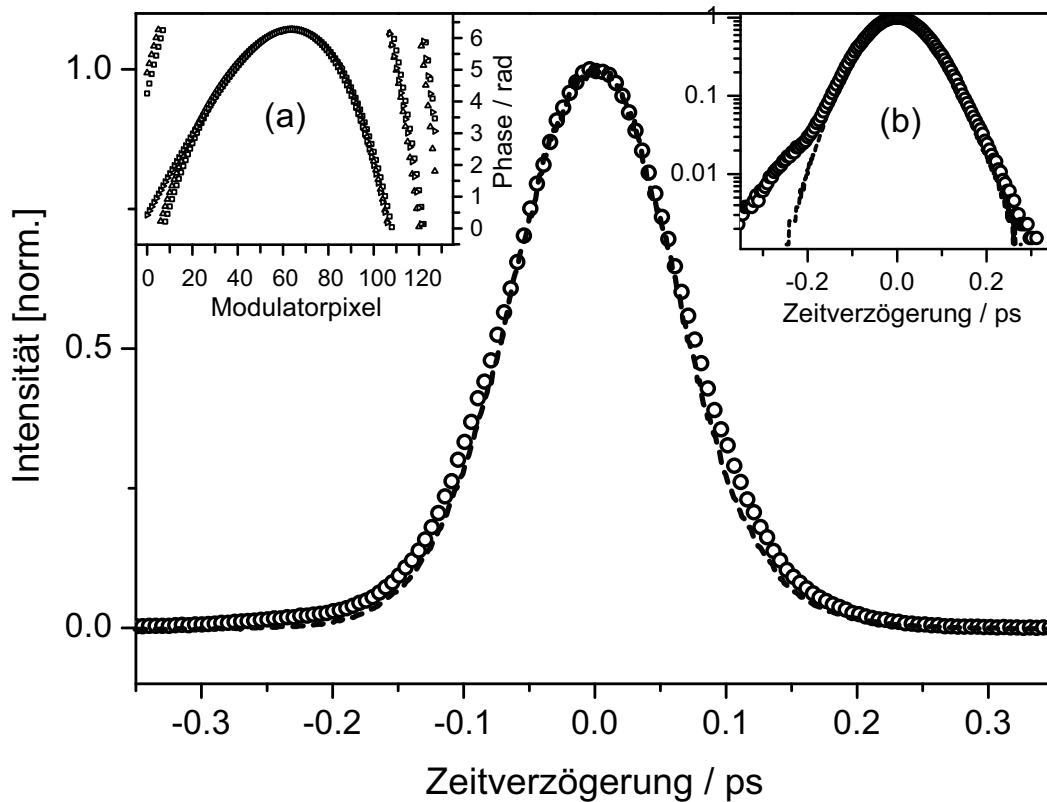


Abbildung 5.15: Vergleich der Kreuzkorrelationen eines mittels parameterischer Optimierung re-komprimierten Pulses (Kreise) mit der des Referenzpulses (gestrichelt). Optimiert wurden die Taylorkoeffizienten b_2 , b_3 und b_4 . Die logarithmische Darstellung (b) zeigt, dass bis auf die Flügel eine gute Übereinstimmung besteht. (a): Die optimierten Phasenmuster verschiedener Durchläufe.

die parametrische Optimierung der Taylorkoeffizienten im Mittel etwas schlechtere Resultate und die Streuung der Ergebnisse ist größer. Einige Ergebnisse sind deutlich besser, es wird sogar ein gegenüber dem Referenzpuls um wenige fs kürzerer Puls erzielt.

5.4.4 Grenzen der Rekompresseion

Aufgrund des Sampling-Theorems (siehe Abschnitt 4.2.6) sind der Rekompresseion Grenzen gesetzt, wenn die kompensierende Phasenfunktion die Nyquist-Bedingung $\delta\psi < \pi$ (Gleichung 4.62) überschreitet. Wird die zu kompensierende Dispersion stetig erhöht, treten damit verbundene Effekte auf, die durch eine Simulation der parametrisierten Rekompresseion gezeigt werden. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.16 aufgetragen. Simuliert wird der hier verwendete Pulsformer bei $\lambda_0 = 770$ nm.

Die Länge des SF10-Glasstabes wird in Schritten von $\Delta x = 50$ mm vergrößert. Zunächst beträgt die Länge 30 mm. Die letzte Simulation wird bei $x = 550$ mm vorgenommen. Für kurze Glasstäbe zeigt sich der Puls vollständig re-komprimiert. Wird das Glas allerdings verlängert, kann der Puls nicht mehr vollständig re-komprimiert werden. Die Pulslänge nimmt zu und Replika-Pulse entstehen, die größten in einem Abstand von 5.7 ps. Die Intensität der Replika steigt mit der Länge des Glasstabes an.

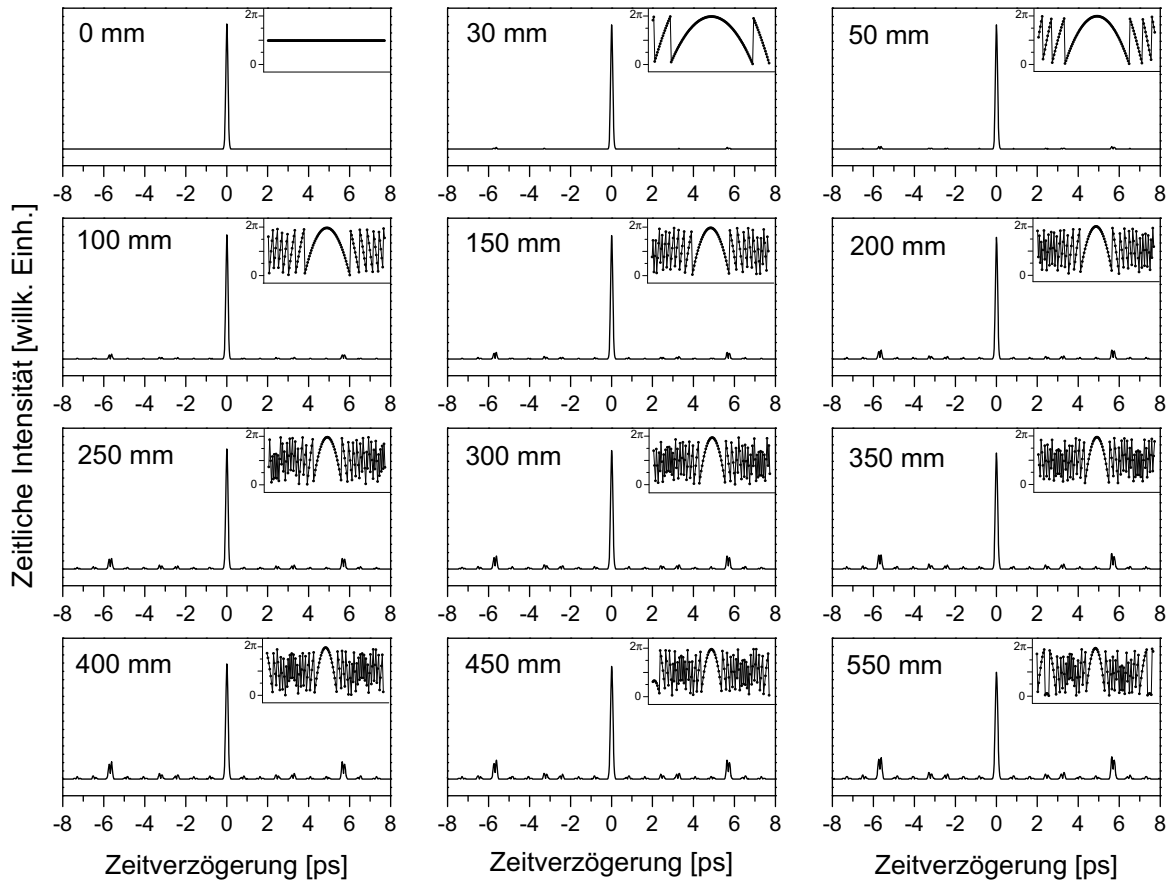


Abbildung 5.16: Simulation des zeitlichen Intensitätsverlaufs rekomprimierter fs-Pulse, für die das dispersive Glas sukzessive verlängert wird. Der Puls wird dispersionsverbreitert, und anschließend parametrisch adaptiv rekomprimiert. Die Ergebnisse zeigen einen zunehmenden Verlust der vollständigen Rekompensation. Die Simulation beinhaltet die Diskretisierung der Phasenfunktion. Als Einschub ist das jeweilige optimale Phasenmuster gezeigt. Die Steigung der zur Rekompensation notwendigen Phasenfunktion nimmt sukzessive zu.

Mit zunehmender Glaslänge nimmt die Steigung der kompensierenden Phasenfunktion zu (Einschübe in Abbildung 5.16). Damit erhöht sich die Phasendifferenz $\delta\psi$ zwischen zwei benachbarten Pixeln. Aufgrund des quadratischen Verlaufs der Phasenfunktion wird die Nyquist-Bedingung zuerst an den Rändern des Spektrums verletzt (siehe Abschnitt 4.2.6). Als Folge findet eine Intensitätsumverteilung in die Replikapulse statt.

Es werden außerdem die Obergrenzen $b_{2,max}$, $b_{3,max}$ und $b_{4,max}$ bestimmt, ab denen keine Konvergenz mehr erreicht wird. Für $b_{3,max} \geq 7 \cdot 10^5 \text{ fs}^3$ und $b_{4,max} \geq 7 \cdot 10^6 \text{ fs}^4$ können die Phasenmodulationen der dritten und vierten Ordnung nicht mehr kompensiert werden. Daher werden für die parametrische Rekompensation des durch das SF57-Glas verbreiterten Pulses Obergrenzen der Optimierungsparameter eingeführt: $b_{2,max} = \pm 1 \cdot 10^4 \text{ fs}^2$, $b_{3,max} = \pm 1 \cdot 10^5 \text{ fs}^3$ und $b_{4,max} = \pm 1 \cdot 10^6 \text{ fs}^4$.

5.5 Optimierung am Molekularstrahl

Die Dauer einer freien Optimierung am Molekularstrahl beträgt zwischen 35 und 50 Minuten. Die Anzahl der benötigten Generationen liegt zwischen 80 und 120. Jede Generation benötigt zwischen 18 und 25 Sekunden. Die meiste Zeit wird durch die Pulsformung, die GPIB-Kommunikation zwischen den Geräten und das Auslesen des Signals verwendet. Wegen der Trägheit der Flüssigkristallmoleküle wird nach jeder Beschaltung des Pulsformers 200 ms gewartet, bis der Befehl zum Auslesen der Messwerte gegeben wird. Die Optimierung der Ionensignale wird mit den in Tabelle 5.1 aufgelisteten Algorithmusparametern vorgenommen.

5.5.1 Rückkopplungsalgorithmus und Signalrauschen

Damit die selbstlernende Rückkopplungsschleife optimal konvergieren kann, sind die Parameter des Optimierungsalgorithmus adäquat zu setzen. In Abschnitt 5.4.3 wurde gezeigt, dass diese Parameter mit Hilfe der Simulation der SHG-Optimierung bestimmt werden können. Unter experimentellen Bedingungen stellt das Signalrauschen die größte Anforderung an die Konvergenzeigenschaft des Algorithmus dar [164]. Mögliche Quellen des experimentellen Signalrauschens sind der Laser, der Pulsformer, der Molekularstrahl und die Detektion. Der verwendete Laseroszillator besitzt eine hohe Puls-zu-Puls-Stabilität. Die Flüssigkristalle des Modulators sind sehr geringen Schwankungen unterlegen, ebenso der Quadrupol-Massenfilter und der Sekundär-Elektronenvervielfacher. Die Hauptquelle des Signalrauschens stellt der molekulare Clusterstrahl dar.

In diesem Abschnitt werden die Auswirkungen des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses aufgrund von zunehmender Instabilität des Clusterstrahls in bezug auf den erzielten Optimierungsfaktor untersucht. Für die Messung wurde ausgenutzt, dass gegen Ende eines Clusterstrahl-Experiments das Signalrauschen langsam zunimmt. Dies liegt daran, dass nach einigen Stunden stabilen Clusterstrahls das feste Alkali-Metall im Ofen verdampft ist und somit der Dampfdruck langsam abnimmt. Während dieser Periode des Experiments kann eine Serie von Optimierungsexperimenten durchgeführt werden. Der für das jeweilige Signal-zu-Rausch-Verhältnis erzielte Optimierungsfaktor κ berechnet sich aus dem Verhältnis $\kappa = I_{opt}^{ion}/I_{tl}^{ion}$ von Ionenausbeute I_{opt}^{ion} des optimierten Pulses und Ionenausbeute I_{tl}^{ion} eines transformlimitierten Pulses. Da die Zunahme des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses während dieser Periode des Clusterstrahl-Experiments recht schnell verläuft, wird eine Drei-Parameter-Optimierung einer sinusförmigen Phasenparametrisierung gewählt. Als System dient die Dreiphotonenionisierung des Kalindimers, d.h. die Ionenausbeute des K_2^+ wird maximiert (siehe Kapitel 7).

In Abbildung 5.17 sind Ionensignale als Funktion der Zeit (Echtzeit) aufgetragen. Es sind die Ionensignale für vier verschiedene Signal-zu-Rausch-Verhältnisse gezeigt. Jedes einzelne gibt zunächst das Ionensignal eines transformlimitierten Pulses I_{tl}^{ion} wieder. Der Sprung zeigt den Übergang zum optimierten Puls mit dessen Ausbeute I_{opt}^{ion} an. Deutlich ist die Zunahme des Signalrauschens und die gleichzeitige Abnahme des Optimierungsfaktors zu erkennen. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SRV) berechnet sich wie folgt aus dem zeitabhängigen Ionensignal: Das $SRV = \frac{\sigma_{ion}}{I_{mean}} \cdot 100$ [%] ist das Verhältnis aus Standardabweichung σ_{ion} des Ionensignals und Mittelwert I_{mean} des Ionensignals. Trägt man den Optimierungsfaktor gegen das Signal-zu-Rausch-Verhältnis auf, erhält man die als Kreise in Abbildung 5.18 gekennzeichneten Werte. Der Fit mit einer exponentiellen Zerfallsfunktion erster Ordnung (durchgezogene Kurve in Abbildung 5.18) lässt einen exponentiellen Abfall der optimierten Ausbeute mit zunehmen-

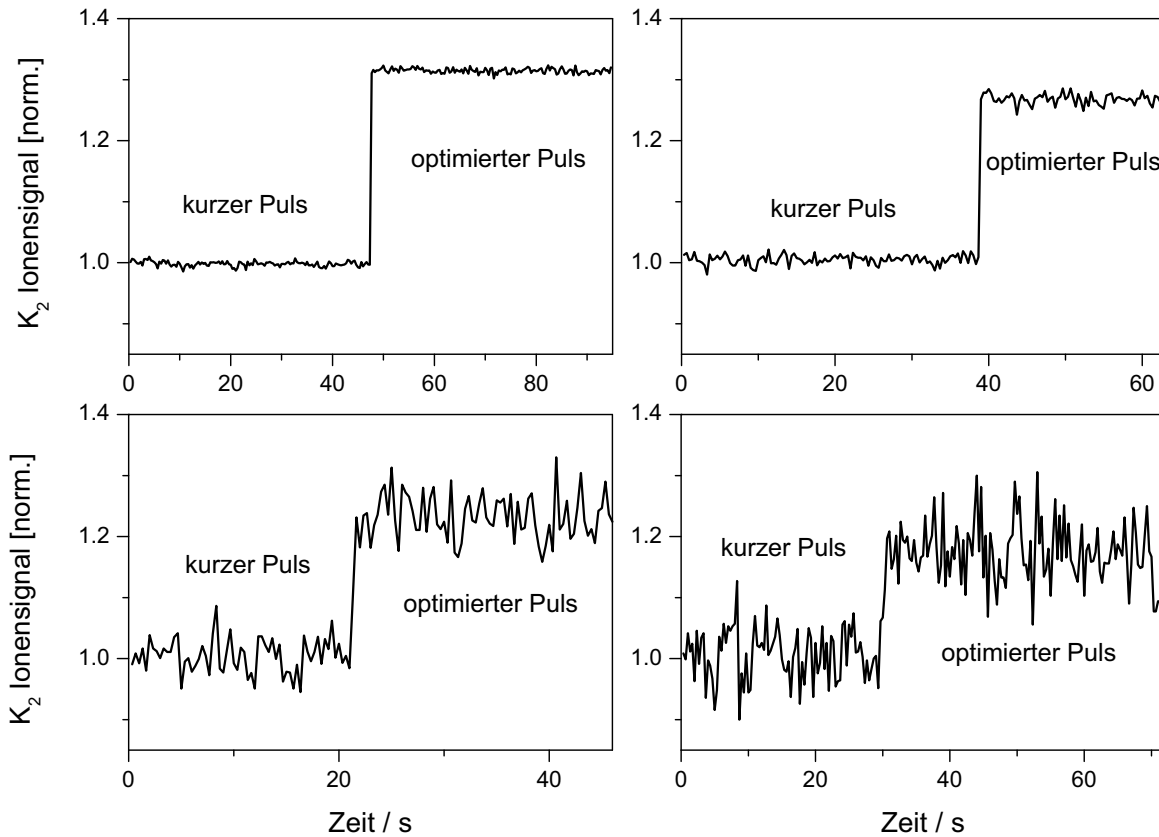


Abbildung 5.17: Einfluss des Signalrauschens auf die Konvergenz des Optimierungsalgorithmus. Eine Drei-Parameter-Optimierung der K_2^+ -Ionenausbeute wird unter stetiger Zunahme des Signalrauschens durchgeführt.

dem Signal-zu-Rausch-Verhältnis vermuten ($f(x) = A_1 \cdot e^{-x/t_1} + y_0$ mit $A_1 = 0.281 (\pm 0.065)$, $t_1 = 3.35 (\pm 2.62)$ und $y_0 = 1.09 (\pm 0.10)$).

Für einen stabilen Clusterstrahl beträgt das Signal-zu-Rausch-Verhältnis $SRV < 1\%$. Unter diesen Bedingungen erzielt die 3-Parameter-Optimierung des K_2^+ einen Optimierungsfaktor von $\kappa = 1.33$. Mit zunehmendem Rauschen fällt zwar die Ionenausbeute in etwa exponentiell, allerdings kann noch bei recht starkem Rauschen von $SRV \approx 4\%$ ein Optimierungsfaktor von etwa $\kappa \approx 1.2$ erreicht werden.

Um während des Optimierungsexperiments einen Vergleich der aktuellen Ionenausbeute mit der des kurzen Pulses herstellen zu können, wird zu Beginn des Experiments das Ionensignal eines kurzen Pulses bestimmt und als Referenz während der Messung angezeigt. So kann während der Optimierung entschieden werden, ob eine erfolgreiche Konvergenz zu erwarten ist. Ein weiterer Anhaltspunkt ist die Streuung der Werte innerhalb einer Generation. Bei einer Optimierungsmessung werden neben der Ausbeute des besten Individuums einer Generation auch die erzielten Resultate des "schlechtesten" Individuums sowie der Mittelwert aller Individuen einer Generation angezeigt. Bleibt die Streuung im Laufe der Optimierung bestehen, so kann keine vollständige und befriedigende Konvergenz erreicht werden. Kurzfristige Störungen, zum Beispiel durch kurzzeitigen Ausfall der Modenkopplung, beeinträchtigen

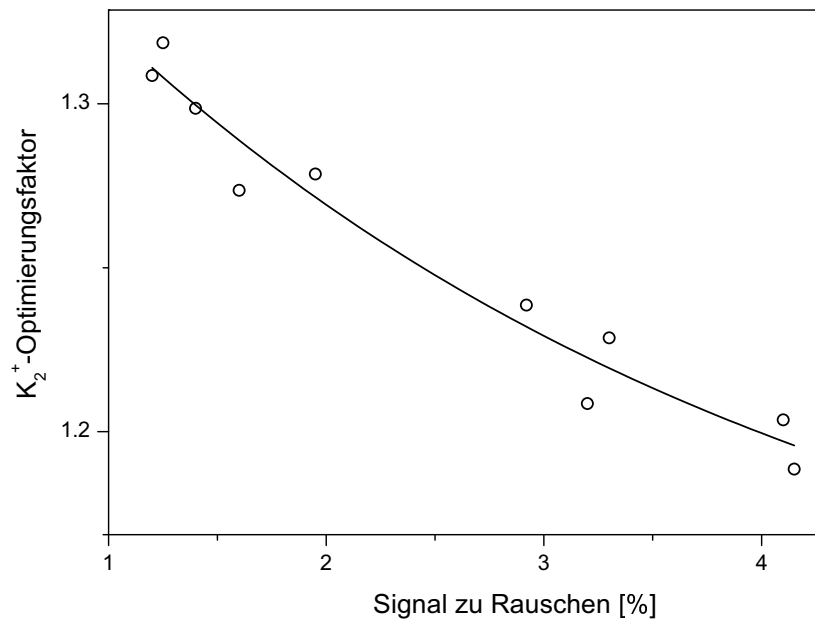


Abbildung 5.18: Der Optimierungsfaktor einer Drei-Parameter-Optimierung sinkt mit zunehmendem Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SRV). Aufgetragen ist der Optimierungsfaktor der sinusförmigen K_2^+ -Maximierung bei zunehmender Instabilität des Clusterstrahls. Das $SRV = \frac{\sigma_{ion}}{I_{mean}} \cdot 100$ [%] bestimmt sich aus der Standardabweichung σ_{ion} . Der Optimierungsfaktor $I_{opt}^{ion}/I_{tl}^{ion}$ wird durch die Mittelwerte der Ionensignale angegeben. Für $SRV \approx 4\%$ kann immer noch ein Optimierungsfaktor von etwa $\kappa \approx 1.2$ erzielt werden. Die Daten lassen sich mit einer einfach exponentiellen Zerfallsfunktion anfitzen.

die Optimierung nicht. Die Optimierung kann unbeschadet weitergeführt werden, wenn keine vollständige Generation von dem Ausfall betroffen ist. Dann bleibt die Information über den bereits erreichten Stand der Optimierung erhalten.

5.6 Zusammenfassung

Für die Steuerungsexperimente wurde ein Optimierungsalgorithmus auf Basis der Evolutiven Strategien erstellt und im Rahmen einer adaptiven Rückkopplungsschleife im Experiment implementiert. Der Algorithmus konnte durch die Simulationen der SHG-Optimierung getestet und verbessert werden. Experimentell ließen sich die Konvergenzeigenschaften der Rückkopplungsschleife rein optisch testen, indem die Ergebnisse der Rekompensation dispersionsverbreiteter fs-Pulse mit den erwarteten Resultaten verglichen wurden. So konnte gezeigt werden, dass der Algorithmus selbst bei freier Variation aller 128 Phasenwerte des Modulators den verbreiterten Puls vollständig rekompriert. Die dabei gefundene Phasenfunktion entspricht dem quadratischen Verlauf des dispersiv linear gechirpten Pulses. Anhand der Parametrisierung der spektralen Phasenfunktion mit einer Taylorentwicklung bis zur vierten Ordnung ließ sich die parametrische Optimierung testen. Die derart parametrisierte Rekompensation führte zu einer drastischen Verkürzung der Optimierungszeit. Die Begrenzungen der Konvergenzeigenschaften durch experimentelles Signalrauschen wurden ebenfalls vermessen. Damit ist die Optimierungsmethode für den Einsatz am Molekularstrahl geeignet.