

New concepts  
for optimal control experiments using  
femtosecond pulse shaping

im  
Fachbereich Physik  
der  
Freien Universität Berlin  
eingereichte Dissertation

vorgelegt von  
Stefan M. Weber

5. Juni 2007

Die Arbeit wurde in der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr. Ludger Wöste im Zeitraum von Oktober 2003 bis Mai 2007 am Fachbereich Physik der Freien Universität Berlin durchgeführt.

Erstgutachter: Prof. Dr. Ludger Wöste  
Zweitgutachter: Prof. Dr. Nikolaus Schwentner  
Datum der Disputation: 10.7.2007

## Kurzfassung

In dieser Arbeit werden neue Konzepte für Experimente der optimalen Kontrolle molekularer Prozesse entwickelt, welche mittels Femtosekunden-Pulsformern und problemangepassten evolutionären Strategien an kleinen Alkaliclustern umgesetzt werden.

Mit einem Eingriff in die Funktion, die das „survival-of-the-fittest“ des evolutionären Optimierungsalgorithmus regelt, wurden elektronische Übergänge zwischen verschiedenen Schwingungszuständen des NaK-Dimers während einer dreiphotonischen Ionisation sichtbar gemacht („Pulse-Cleaning“), und das Experiment in den allgemeinen Zusammenhang der Mehrzieloptimierung eingereiht. Des Weiteren wurde ein Verfahren zur Analyse von experimentellen Optimierungsverläufen vorgestellt, welches physikalisch relevante Pulscharakteristika während des iterativ erfolgenden Optimierungsprozesses aufzeichnet, und eine Statistik ermöglicht. Damit konnte am Beispiel der isotopenselektiven Ionisierung von  $K_2$  die Priorität der spektralen gegenüber den zeitlichen Pulsmerkmalen untermauert werden.

Dem Problem des großen Suchraums von Pulsformern herstellbarer Lichtfelder wurde mit einer Pulsparametrisierung begegnet. Diese setzt einen Pulszug aus Unterpulsen zusammen, welche mit den Parametern zeitliche Position, Chirps und Intensität beschrieben werden. Ein Optimierungsalgorithmus, der solche Steuerparameter anpasst, erlaubt es unter anderem, maßgeschneiderte Experimente durchzuführen. Ein solcher wurde in einer ersten Anwendung dafür eingesetzt, Aufschluss über den Zusammenhang von NaK-Ionenausbeute und minimal erforderlicher Pulskomplexität zu erhalten.

Die Steuerparameter konnten ebenfalls auf polarisationsgeformtes Licht ausgedehnt werden, welches mit Hilfe zweier neu entwickelter Pulsformeraufbauten hergestellt wird. Einer der beiden neuen Pulsformer, der zusätzlich zur Phase und Polarisation auch die Amplitude modulieren kann, wurde benutzt, um erste Experimente mit parametrisch geformten Pulsen am NaK durchzuführen. Durch die nun dreidimensionale Beeinflussung des elektrischen Feldes gelang es, molekulare  $\Sigma \leftrightarrow \Sigma$  und  $\Sigma \leftrightarrow \Pi$  Übergänge im optimierten Feld nachzuvollziehen.

Die Eigenschaft des zweiten Aufbaus, das Lichtfeld durch die unabhängige Modulation zweier orthogonaler Komponenten beliebig zu formen, wurde schließlich mittels parametrisch hergestellter Pulszüge veranschaulicht. Zuletzt konnten die Konzepte Polarisationsmodulation und Mehrzieloptimierung in einem Algorithmus zusammengefasst werden, der das Zurückrechnen einer dreidimensionalen Pulsstruktur aus einer Kurvenschar von Kreuzkorrelationen und Spektren beherrscht.



---

# Contents

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Physical Fundamentals and Employed Methods</b>	<b>3</b>
2.1	A Brief Introduction to Molecular Dynamics . . . . .	3
2.2	Mathematical description of fs-laser pulses . . . . .	6
2.3	Birefringence and Liquid Crystal Modulators . . . . .	7
2.4	Evolutionary Algorithms . . . . .	8
<b>3</b>	<b>Experimental Setup</b>	<b>13</b>
3.1	Molecular beam apparatus . . . . .	13
3.2	Laser systems and pulse detection . . . . .	14
3.3	Pulse shaper setup for linearly polarized pulses . . . . .	14
3.3.1	SLM-640 prototype . . . . .	16
3.4	Pulse detection . . . . .	17
<b>4</b>	<b>Control Pulse Cleaning</b>	<b>19</b>
4.1	Introduction . . . . .	19
4.1.1	Overview of the NaK molecule . . . . .	20
4.1.2	Multi-objective approach(es) . . . . .	21
4.1.3	Concept of Pareto-optimality . . . . .	22
4.2	Control Pulse Cleaning on NaK . . . . .	24
4.2.1	Frequency cleaning . . . . .	25
4.2.2	Cleaning strength dependent fitness . . . . .	27
4.2.3	Pareto-optimal front for NaK cleaning . . . . .	28
4.3	Summary and Outlook . . . . .	30
<b>5</b>	<b>Course Analysis</b>	<b>31</b>
5.1	Introduction . . . . .	31
5.2	Pulse reconstruction . . . . .	32
5.3	NaK course analysis . . . . .	32
5.3.1	Tracking an NaK optimization . . . . .	33
5.4	K <sub>2</sub> course analysis . . . . .	35
5.4.1	Tracking a K <sub>2</sub> optimization . . . . .	38
5.5	Conclusion and Outlook . . . . .	41

<b>6</b>	<b>Parametric Pulse Shaping</b>	<b>43</b>
6.1	Introduction . . . . .	43
6.2	Historical perspective . . . . .	43
6.3	Temporal parametrization . . . . .	46
6.3.1	Parametric pulse form calculation . . . . .	48
6.3.2	Double pulse examples . . . . .	49
6.3.3	Algorithm implementation . . . . .	51
6.3.4	Phase-only shaping . . . . .	52
6.3.5	Three-pulse NaK optimization . . . . .	52
6.3.6	Six-pulse NaK optimization . . . . .	55
6.4	Spectral parametrization . . . . .	56
6.4.1	Transition peak finder for NaK . . . . .	56
6.4.2	NaK isotope selective ionization . . . . .	58
6.4.3	Peak finder / NaK isotopes . . . . .	59
6.5	Summary . . . . .	61
<b>7</b>	<b>Parametric polarization pulse shaping</b>	<b>63</b>
7.1	Mathematical tools . . . . .	63
7.1.1	Jones Formalism . . . . .	63
7.1.2	Ellipse parameters . . . . .	65
7.1.3	Parametric polarization transients . . . . .	67
7.1.4	Extended Poincaré representation . . . . .	70
7.2	Historical perspective . . . . .	71
7.3	Serial setup . . . . .	71
7.3.1	Grating effects . . . . .	73
7.3.2	Temporal pulse forms with the serial setup . . . . .	75
7.4	Experimental realization . . . . .	76
7.4.1	Pulse detection . . . . .	76
7.4.2	Ellipse parameter fits . . . . .	77
7.4.3	Fit coefficient transcriptions . . . . .	77
7.4.4	3D amplitude/Poincaré representation . . . . .	79
7.4.5	Spectral properties . . . . .	81
7.5	Pulse forms employing amplitude modulation . . . . .	81
7.5.1	Application of grating precompensation . . . . .	81
7.5.2	Sum-intensity amplitude modulation . . . . .	83
7.6	General temporal pulse forms with the serial setup . . . . .	84
7.6.1	Attempt at arbitrary pulse forms . . . . .	84
7.6.2	Side pulse-free fields . . . . .	88
7.7	Restricted example pulses . . . . .	88
7.8	Parametric polarization shaping on NaK . . . . .	91
7.8.1	Interaction of polarized pulses with linear molecules . . . . .	91
7.8.2	Free and PAP optimization of NaK . . . . .	92
7.8.3	Parametric PAP optimization . . . . .	94
7.8.4	Parametric PXP optimization . . . . .	95
7.9	Summary . . . . .	96

---

<b>8</b>	<b>Polarization shaping of general pulse profiles</b>	<b>99</b>
8.1	Parallel setup . . . . .	99
8.1.1	Layout . . . . .	99
8.1.2	Output field calculation . . . . .	101
8.2	Experimental example pulses . . . . .	101
8.3	Arbitrary temporal fields . . . . .	104
8.3.1	Incorporation of a limited laser bandwidth . . . . .	104
8.3.2	Intrapulse modulation . . . . .	105
8.4	Summary and Outlook . . . . .	108
<b>9</b>	<b>Retrieval of polarization shaped pulses with a multi-objective EA</b>	<b>109</b>
9.1	Introduction . . . . .	109
9.2	Multi-objective optimization . . . . .	110
9.2.1	Test function for NSGA-II . . . . .	112
9.3	Pulse retrieval routine . . . . .	113
9.3.1	Projected intensities from set B . . . . .	113
9.3.2	Spectral influence of the helicity . . . . .	114
9.3.3	Input data . . . . .	115
9.3.4	Retrieval algorithm . . . . .	116
9.3.5	Quadruple pulse retrieval . . . . .	118
9.3.6	Experimental pulse retrieval . . . . .	120
9.4	Summary and Outlook . . . . .	121
<b>10</b>	<b>Summary and Outlook</b>	<b>123</b>
	<b>Bibliography</b>	<b>127</b>
	<b>Appendix</b>	<b>139</b>

---