

Teilprojekt C4: **Theorie zur Kontrolle photoinduzierter Ultrakurzzeitphänomene in Clustern und im Festkörper**

Teilprojektleiter: **Prof. Dr. Karl-Heinz Bennemann**

Dienstanschrift: **Freie Universität Berlin, Fachbereich Physik (WE 2), Arnimallee 14, 14195 Berlin**

Kommunikation: Tel: 0049 30 838 55503, Fax: 0049 30 838 56799
Email: khb@physik.fu-berlin.de
Internet: <http://www.physik.fu-berlin.de/~ag-bennemann>

Teilprojektleiter: **Dr. Martin E. Garcia**

Dienstanschrift: **Freie Universität Berlin, Fachbereich Physik (WE 2), Arnimallee 14, 14195 Berlin**

Kommunikation: Tel. 0049 30 838 56124, Fax: 0049 30 838 56799
Email: garcia@physik.fu-berlin.de
Internet: <http://www.physik.fu-berlin.de/~garcia>

Fachgebiet und Ausrichtung: **Theoretische Physik, Elektronische Theorie, Festkörperphysik, Cluster, Computational Physics**

Keywords: nonequilibrium processes, quantum dots, quantum genetic algorithms, optimal control, lattice instabilities

Summary of results of the years 1998 – 2000

In the last period we have concentrated on the analysis of laser induced ultrafast processes in solids, films and surfaces, corresponding to the granted subprojects UPI and UPIII. Our investigations on laser induced phase transitions were particularly extensive and led to interesting results. For instance, we have shown that for a broad range of laser pulse intensities and durations an ultrafast nonequilibrium transition from diamond to graphite occurs. The mechanisms of this graphitization are qualitatively different from those of the corresponding transition in thermodynamic equilibrium. We have also predicted the existence of two different ablation thresholds in graphite films. One corresponds to the ejection of intact graphite sheets for low laser intensities, while the other consists in the complete melting and subsequent evaporation of the material for higher laser intensities. Other interesting effects were found for carbon systems. We have also performed simulations for silicon, C₆₀ molecular crystals, C₆₀ clusters and carbon nanotubes.

Related to the subproject UPIII we have studied the ultrafast relaxation of electronic states in metallic surfaces.

Apart from the activities mentioned above we have also made contributions which were not included in the subprojects I and III. However, they represent an important step in the direction of optimal control of ultrafast processes which is the subject of our proposal for the next period. We have developed a genetic algorithm which is able to handle quantum mechanical problems. Applying this method we obtained the ground-state wave functions for different Hamiltonians in real space (in one and two dimensions). Following the idea proposed by Judson and Rabitz we have applied our genetic algorithm to optimize light pulses. In this case we obtained the optimal pulse (compatible with given boundary conditions) which maximizes the electric current through a double quantum dot configured as an electron pump.

Übersicht über die Ergebnisse der Jahre 1998 – 2000

In der vergangenen Förderperiode haben wir uns auf die Analyse von laserinduzierten ultraschnellen Prozessen im Festkörper, in Filmen und in Oberflächen konzentriert, was den bewilligten Unterprojekten I und III entspricht. Unsere Untersuchungen zu laserinduzierten Phasenübergängen waren besonders intensiv und haben zu interessanten Resultaten geführt. So haben wir zum Beispiel gezeigt, dass für einen weiten Bereich von Laserpulsintensitäten und –dauern ein ultraschneller Nichtgleichgewichts-Übergang von Diamant zu Graphit auftritt. Die Mechanismen dieser Graphitisierung sind qualitativ verschieden von denen des entsprechenden Übergangs im thermodynamischen Gleichgewicht. Wir haben auch die Existenz von zwei verschiedenen Ablationsschwellen in Graphitfilmen vorhergesagt. Eine entspricht dem Abtrag von intakten Graphitschichten bei niedrigen Laserintensitäten, während die andere im vollständigen Schmelzen und anschließenden Verdampfen des Materials bei höheren Laserintensitäten besteht. Es wurden für Kohlenstoffsysteme noch weitere interessante Effekte beobachtet. Wir haben auch Simulationen für Silizium, den C₆₀-Molekülkristall, für C₆₀-Cluster und für Kohlenstoff-Nanotubes durchgeführt.

Bezogen auf das Unterprojekt III haben wir die ultraschnelle Relaxation von elektronischen Zuständen in Metalloberflächen studiert.

Außer den oben genannten Arbeiten haben wir auch Ergebnisse erzielt, die nicht den Unterprojekten I und III zuzuordnen sind. Sie stellen jedoch einen wichtigen Schritt in der Richtung

der optimalen Kontrolle von ultraschnellen Prozessen dar, die Thema unseres Antrages für die nächste Förderperiode ist. Wir haben einen genetischen Algorithmus entwickelt, mit dem quantenmechanische Probleme behandelt werden können. Unter Anwendung dieser Methode haben wir die Grundzustandswellenfunktionen für unterschiedliche Hamiltonoperatoren im direkten Raum (in einer und in zwei Dimensionen) ermittelt. Wir haben eine Idee von Judson und Rabitz aufgegriffen und den genetischen Algorithmus bei der Optimierung von Laserpulsen eingesetzt. In diesem Fall haben wir den optimalen (mit den Randbedingungen kompatiblen) Puls erhalten, der den elektrischen Strom durch einen als Elektronenpumpe konfigurierten doppelten Quantenpunkt maximiert.

Einzelberichte aus den Jahren 1998 bis 2000

Im folgenden werden die Resultate aus den bewilligten Unterprojekten 1 und 3 sowie darüberhinausgehende Untersuchungen im Detail dargestellt.

(1) UP I: Lasersteuerung von Phasenübergängen und Bond-Veränderungen

Kenntnisstand bei der letzten Antragstellung

Die theoretische Beschreibung von laserinduzierten Prozessen in kovalent gebundenen Festkörpern war bis 1998 auf Simulationen von laserinduziertem Schmelzen beschränkt^{1,2}. Die meisten Theorien basierten auf Molekular-dynamik-Simulationen, die unter Benutzung von zwei Annahmen durchgeführt wurden, namentlich (1) Pulsdauer gleich Null, und (2) konstantes Volumen der Molekular-dynamik-Einheitszelle während der ganzen Simulationszeit. Keine der erwähnten Annahmen kann für die Untersuchung von laserinduzierten strukturellen Veränderungen verwendet werden. Die Annahme, dass das Volumen der Zelle konstant bleibt, schließt künstlich Relaxationskanäle aus, die Volumenveränderungen beinhalten. Andererseits ist die Annahme der plötzlichen Anregung, d.h. die Modellierung des Laserpulses durch eine Deltafunktion, nicht geeignet für eine Untersuchung von Pulsdauer-Effekten. Das allgemeine Modell, das zur Beschreibung der laserinduzierten Ablation benutzt wurde, basierte auf der Annahme, dass der Ausgangspunkt für die Zerstörung des Materials

¹ P. Stampfli und K. H. Bennemann, Phys. Rev. B **49**, 7299 (1994) und Referenzen darin.

² P. L. Silvestrelli, M. Alavi, M. Parrinello und D. Frenkel, Phys. Rev. Lett. **77**, 3149 (1996).

nach Laseranregung das (meistens thermische) Schmelzen ist. Bis 1998 basierten die theoretischen Ansätze auf diesem Modell.

Methoden und Ergebnisse

Eine Theorie für die Reaktion von kovalent gebundenen Festkörpern und Clustern auf intensive Laserpulse ($10^{10} - 10^{13} \text{ W/cm}^2$) wurde entwickelt. Wir verwenden eine Molekulardynamik-Methode auf der Grundlage eines elektronischen Tight-Binding-Hamiltonoperators. Diese Rechnung im Ortsraum berücksichtigt alle atomaren Freiheitsgrade. Besondere Aufmerksamkeit galt dem starken Nichtgleichgewicht, das der ultrakurze Laserpuls im elektronischen System verursacht. Eine Methode zur Berechnung der Nichtgleichgewichts-Besetzungszahlen für die Energieniveaus des Systems führt auf eine Molekulardynamikrechnung auf zeitabhängigen Potentialenergieflächen. Diese Herangehensweise bietet einen theoretischen Rahmen für die Behandlung von starken Nichtgleichgewichtssituationen in Materialien, bei denen atomare und elektronische Freiheitsgrade eine gleich wichtige Rolle spielen. Die Methode für die Berechnung von laserinduzierten Strukturveränderungen ist nicht auf den Tight-Binding-Formalismus beschränkt und könnte ohne weiteres für Rechnungen mit der Dichtefunktionaltheorie angepasst werden. Die theoretische Methode wurde auf kovalent gebundene Festkörper wie Graphit, Diamant, Silizium und auf große kovalent gebundene Cluster wie C_{60} und Kohlenstoff-Nanotubes angewandt.

In der von uns entwickelten Methode behandeln wir laserinduzierte Strukturumwandlungen mit Molekulardynamikrechnungen, für die aus einem Tight-Binding-Hamiltonoperator Kräfte gewonnen werden:

$$H = \sum_{i\mathbf{a}} \mathbf{e}_{i\mathbf{a}} c_{i\mathbf{a}}^+ c_{i\mathbf{a}} + \sum_{i\mathbf{j}\mathbf{a}\mathbf{b}} V_{i\mathbf{j}\mathbf{a}\mathbf{b}} c_{i\mathbf{a}}^+ c_{j\mathbf{b}} + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \mathbf{f}(r_{ij})$$

Dabei sind die $V_{i\mathbf{j}\mathbf{a}\mathbf{b}}$ Hoppingintegrale, und $\mathbf{f}(r_{ij})$ ist ein repulsives Potential, das der Abstoßung der Atomrümpfe Rechnung trägt.

Für die Behandlung von Festkörpern im Volumen haben wir Molekulardynamikrechnungen bei konstantem Druck angewandt³. Diese führen die drei Vektoren a , b und c , die die Molekulardynamik-Einheitszelle aufspannen und die in der 3×3 -Matrix h zusammengefaßt werden, als neue Freiheitsgrade ein. Die absoluten Koordinaten r_i stehen dann über die Beziehung $r_i = h s_i$ mit den auf die Matrix h bezogenen relativen Koordinaten s_i in Verbindung. Die Lagrangefunktion, aus der die Bewegungsgleichungen für die $3N+9$ Freiheitsgrade des Systems gewonnen werden, erhält dann zwei nicht mikroskopisch begründbare Zusatzterme:

$$L = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N m_i \dot{s}_i^t h \dot{s}_i - \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N f(r_{ij}) + \frac{1}{2} W S p (h^t h) - p \Omega$$

Auf die Molekulardynamik-Einheitszelle, die im Raum periodisch fortgesetzt wird, wirkt jetzt der äußere Druck p , und sie kann entsprechend ihrer Bewegungsgleichungen ihre Form und Größe ändern. Dieser Ansatz für die Lagrangefunktion ist gerechtfertigt, weil sich daraus bis auf kleine Fehler die richtigen statistischen Mittelwerte für Ensemble von Teilchen bei konstantem Druck ergeben.

Zur Berechnung der Kräfte auf die Teilchen des Festkörpers nach optischer Anregung gehen wir von einer Gleichgewichtsbesetzung der Tight-Binding-Energieniveaus aus, die durch eine Fermifunktion bei einer bestimmten elektronischen Temperatur gegeben ist. Diese Besetzungen werden durch den Laserpuls verändert, und die Relaxation der entstehenden Nichtgleichgewichtsverteilung durch Elektron-Elektron-Stöße wird explizit berücksichtigt. Das Abklingen der elektronischen Anregungen durch Prozesse wie Diffusion der heißen Ladungsträger, Elektron-Phonon-Wechselwirkung sowie Rekombination wird mit einem einfachen Modell behandelt. Die Kräfte werden dann aus den Tight-Binding-Energieniveaus unter Anwendung des Hellman-Feynman-Theorems ermittelt /JGB99a/, /JGB99b/.

³ M. Parrinello, A. Rahman, J. Appl. Phys. **52**, 7182 (1981).

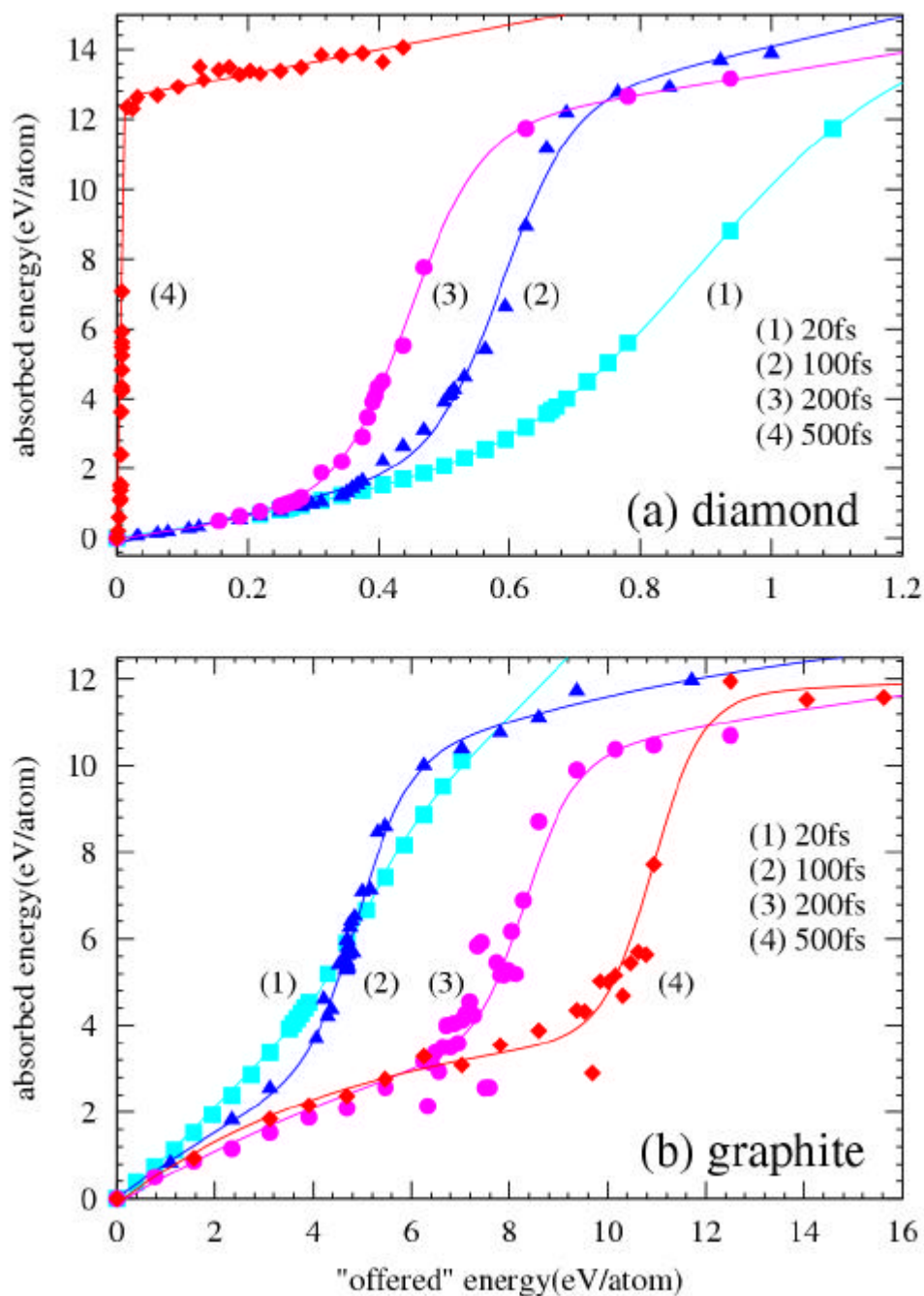


Abbildung 1: Absorbierte Energie als Funktion der Intensität des Laserpulses für (a) Diamant und (b) Graphit. Die „angebotene“ Energie der Abszisse ist proportional zur Intensität des Laserpulses. Die Abhängigkeit der absorbierten, d.h. im Material deponierten Energie, von der Pulsintensität ist für verschiedene Pulsdauern gezeigt. Die Form der Absorptionskurven und ihre Ordnung bezüglich der Pulsdauer ist auf ultraschnelle Änderungen der Zustandsdichte zurückzuführen.

Die Untersuchung der absorbierten Energie in Diamant und Graphit als Funktion von (1) der angebotenen Energie und (2) der Laserpulsdauer hat ein sehr interessantes Verhalten ergeben (siehe Abbildung 1). Es wurde gezeigt, dass der strukturelle Response des Materials während der Einwirkung des Laserpulses für starke Veränderungen in der Absorption der Materialien verantwortlich sein kann. Ob solche starken Veränderungen die Absorption modifizieren oder nicht, hängt stark von der Dauer des Pulses ab. Die beobachteten Effekte können für die Interpretation von Experimenten sehr wichtig sein, da die stark nichtlineare Abhängigkeit der Absorption des Materials von der Energie, die der Puls anbietet, unerwartete räumliche Profile der absorbierten Energie zur Folge hat/JGB01a/.

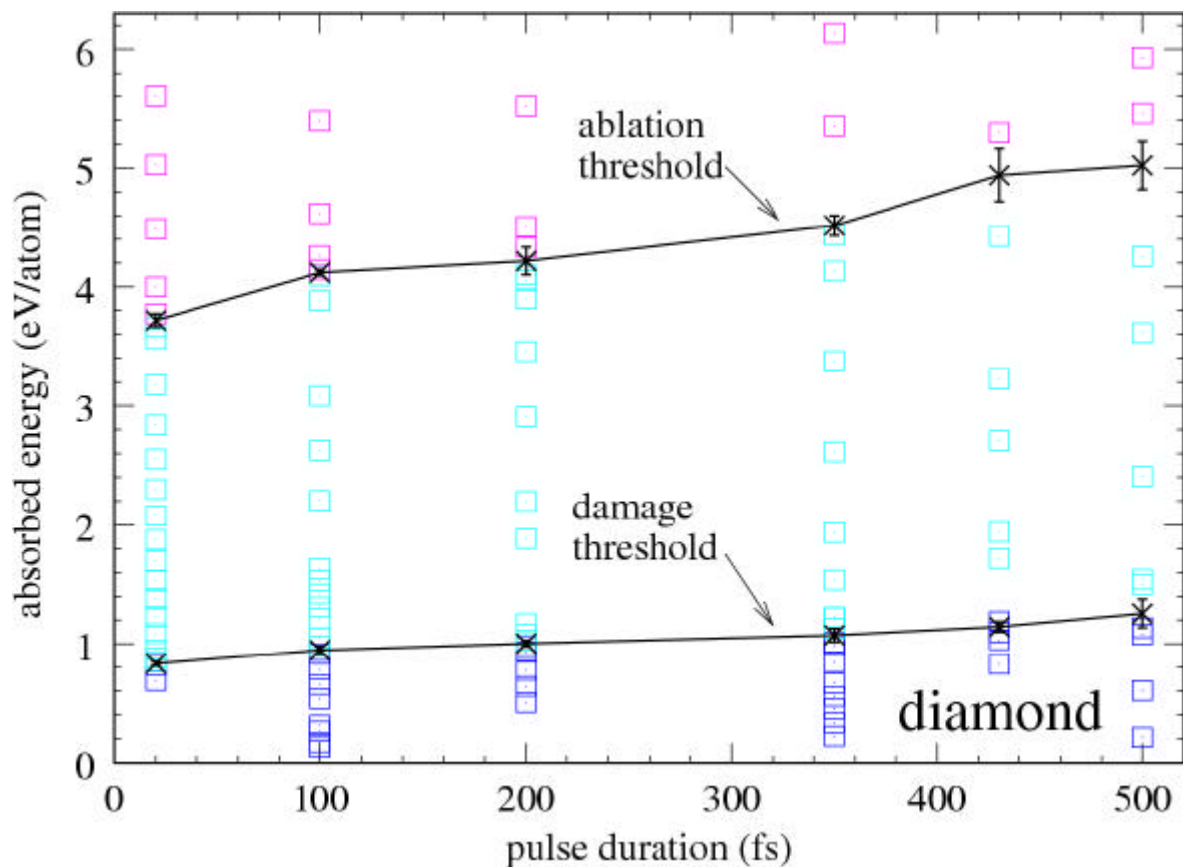


Abbildung 2: Schadens- und Ablationsschwelle von Diamant als Funktion der Laserpulsdauer. Oberhalb der Schadensschwelle führt die Laseranregung zu ultraschneller Graphitisierung, während das Material oberhalb der Ablationsschwelle verdampft. Jedes Quadrat in der Figur entspricht einer berechneten Trajektorie.

Ablationsschwellen wurden für Diamant, Graphit und Silizium berechnet. Für Diamant und Silizium wurde unterhalb der Ablationsschwellen eine weitere Schwelle gefunden, bei der das

Material beschädigt wird. Als Beispiel sind in Abbildung 2 die Schadens- und Ablationsschwellen von Diamant als Funktion der Laserpulsdauer gezeigt. Während sich die beiden Schwellen in den Kohlenstoffmaterialien als nahezu unabhängig von der Pulsdauer erweisen (zwischen $\tau=20$ fs und $\tau=500$ fs), findet man in Silizium ein Ansteigen der Ablationsschwelle mit der Pulsdauer /JGB01b/.

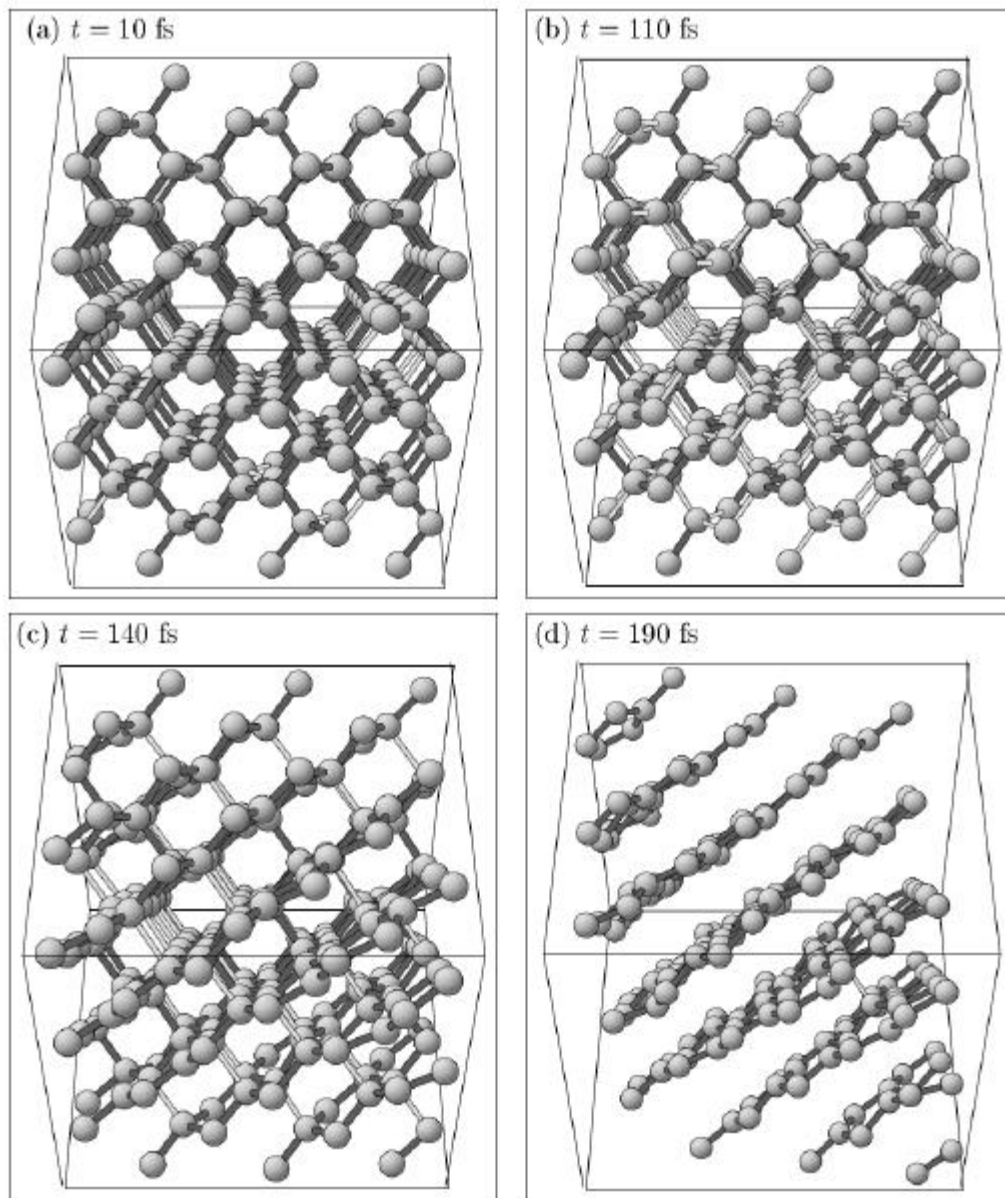


Abbildung 3: Ultraschnelle Graphitisierung eines Diamantkristalls in (100)-Richtung. Eine Energie von 1.1 eV/Atom wurde aus einem Laserpuls von $\tau=20$ fs Dauer absorbiert. Die Zeit ist relative zum Pulsmaximum angegeben. Bindungen mit einer Länge bis 1.6 Å sind dunkelgrau dargestellt, solche mit einer Länge zwischen 1.6 Å und 2.0 Å hellgrau.

Die Strukturveränderungen, die in Diamant und Graphit an der Schwelle auftreten, bei der das Material geschädigt wird, wurden im Detail untersucht. In Diamant wurde eine ultraschnelle Graphitisierung entdeckt /JGB99a/, /JGB99b/. Momentaufnahmen von diesem Prozess sind in Abbildung 3 dargestellt. Dies wurde in der Literatur bislang nicht beschrieben. Die Nichtgleichgewichts-Graphitisierung findet in einem weiten Bereich von Pulsdauern und Intensitäten statt. Sie kann mit der Unterdrückung des Diamantminimums in der Potentialenergiefläche in Gegenwart eines starken Elektron-Loch-Plasmas erklärt werden. Dieses Ergebnis könnte eine veränderte Interpretation von experimentellen Beobachtungen zur Folge haben. Laserinduzierte Fest-Fest-Phasenübergänge, die durch die photoinduzierte Unterdrückung eines Minimums in der Potentialenergiefläche ausgelöst werden, könnten einen Mechanismus von allgemeiner Gültigkeit darstellen.

Laserinduzierte Gitterinstabilitäten im C_{60} -Kristall wurden auch untersucht /JGB99b/.

In Graphit wurde ein neuer Ablationsmechanismus beobachtet. Bei Energien unterhalb der Ablationsschwelle verursacht das laserinduzierte Elektron-Loch-Plasma eine intensive Vibrationsanregung der Graphitebenen. Die starken Oszillationen der Atome senkrecht zu den Graphitschichten führen zu einer Kollision zweier benachbarten Ebenen, in der Impuls übertragen wird. Dieser Impuls führt dazu, dass Ebenen auf der Graphitoberfläche als Ganzes abgetragen werden. In Abbildung 4 sind Momentaufnahmen von diesem Ablationsmechanismus in einem Graphitfilm dargestellt. Dieser Ablationsvorgang ist völlig verschieden von der Ablation bei höheren deponierten Energien, da große Teile von Graphitebenen anstelle von kleinen Kohlenstoffclustern (Ketten) das Ablationsprodukt sind. Dieser Prozess könnte bei der Bildung von Kohlenstoff-Nanotubes durch Ablation von Graphit eine Rolle spielen. Die Entdeckung dieser neuen Ablationsschwelle von Graphit hat zu einem Verständnis von experimentellen Reflektivitätsbildern geführt, die vorher noch keine Interpretation gefunden hatten /JGB00/.

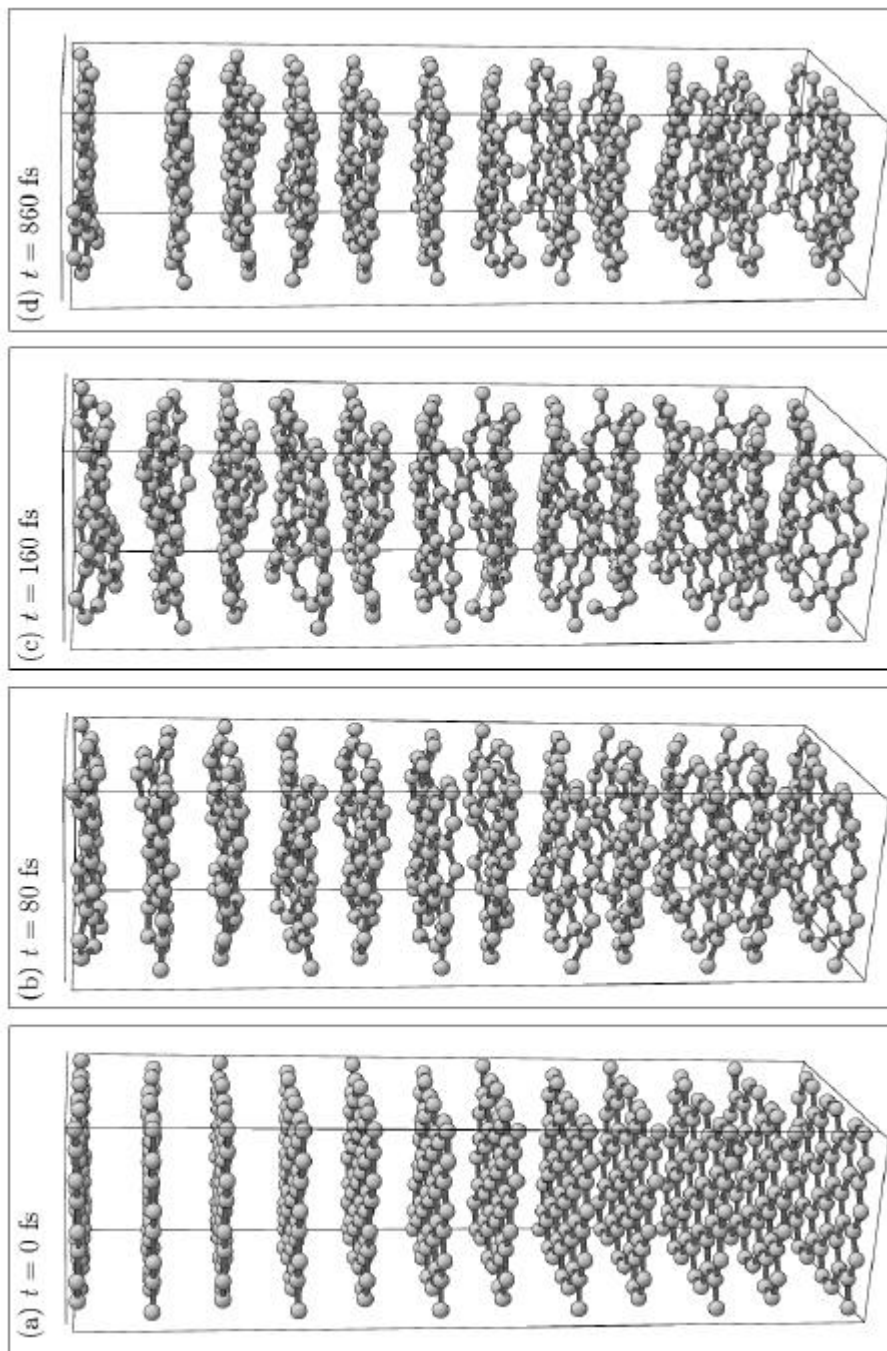


Abbildung 4: Ablation eines Graphitfilms bei einer absorbierten Energie von 2.4 eV/Atom mit einer Pulsdauer von $\tau=20$ fs. Diese Energiedichte liegt unterhalb der Schwelle für die Zerstörung der Graphitebenen. Dadurch wird die absorbierte Energie in eine starke Vibrationsanregung der Graphitebenen übertragen. Zum Zeitpunkt $t=160$ fs nach dem Pulsmaximum führt das zu einer Kollision benachbarter Ebenen, bei der Impuls übertragen wird. In der Folge werden die oberste und die unterste Lage des Films abgetragen. Die Graphitebenen sind in der Horizontalen periodisch fortgesetzt, grenzen aber in der Vertikalen an das Vakuum.

Die Untersuchung des Nichtgleichgewichts-Schmelzens von Kohlenstoff hat interessante Einsicht in die Vorgänge gebracht, die von einem intensiven Elektron-Loch-Plasma hervorgerufen werden. Das Schmelzen von Graphit unter einem Druck $p=10$ GPa geschieht in zwei Schritten: Zuerst bildet sich Unordnung in den Graphitschichten, während die Schichtstruktur selbst intakt bleibt. Dieser Prozess findet auf einer Zeitskala von 200 fs statt und ergibt schon eine metallische Zustandsdichte. Momentaufnahmen aus dieser ersten Phase des laser-induzierten Schmelzens von Graphit sind in Abbildung 5 zu sehen. Die Zerstörung der Schichtstruktur von Graphit findet auf einer längeren Zeitskala von etwa 1 ps statt /JGB01c/. Die Untersuchung des Schmelzprozesses von Kohlenstoff ist wichtig für die zahlreichen technischen Anwendungen von Kohlenstoffmaterialien und speziell für den Übergang von Graphit zu Diamant.

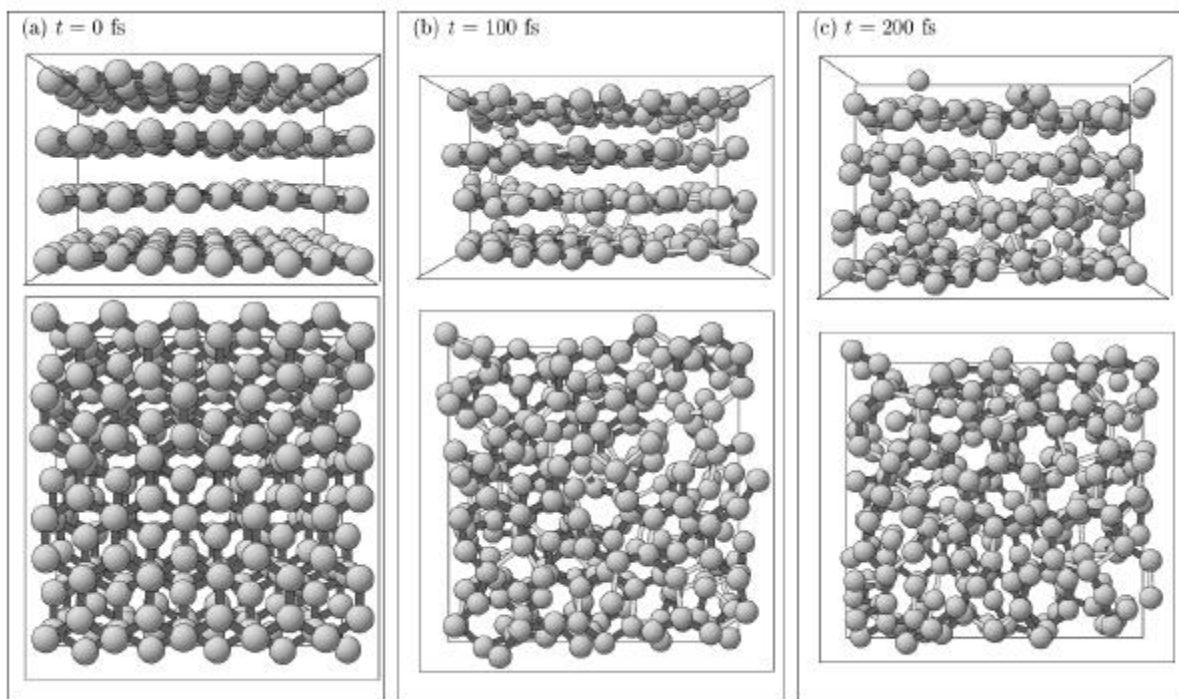


Abbildung 5: Beginn des Schmelzens von Graphit unter einem Druck von 10 GPa bei einer absorbierten Energie von 3.8 eV/Atom. Die Pulsdauer war $\tau=20$ fs. Die Einheitszelle ist jeweils von oben und von der Seite gezeigt. In dieser frühen Phase des Schmelzens wird die Ordnung innerhalb der Graphitebenen zerstört, während die Schichtstruktur im Wesentlichen noch erhalten bleibt.

Fullerene wie C_{60} und Kohlenstoff-Nanotubes wurden wegen ihres Bindungstyps untersucht, der eine Mittelstellung zwischen sp^2 - und sp^3 -Hybridisierung einnimmt. Ein wesentlicher Unterschied zwischen thermischer und nichtthermischer Fragmentation von C_{60} -Molekülen wurde beobachtet. Während das Aufheizen von C_{60} auf eine Temperatur $T=5600$ K zur Emission von Kohlenstoff-Dimeren auf einer Zeitskala von einigen Pikosekunden führt, bewirkt ein laserinduziertes Elektron-Loch-Plasma die Emission von Kohlenstoff-Monomeren auf einer weit kürzeren Zeitskala von einigen hundert Femtosekunden [JGA01]. Ein Beispiel für eine solche Nichtgleichgewichts-Fragmentation von C_{60} ist in Abbildung 6 dargestellt. Darüberhinaus wurde gezeigt, dass es zwei Mechanismen gibt, durch die ein laserinduziertes Elektron-Loch-Plasma Kohlenstoff-Nanotubes beschädigt. Kohlenstoff-Monomere können emittiert werden, wobei saubere Löcher in der Wand des Nanotubes auftreten, und die Nanotubes können aufreißen, so dass Teile der gekrümmten Graphitebene wieder planar werden.

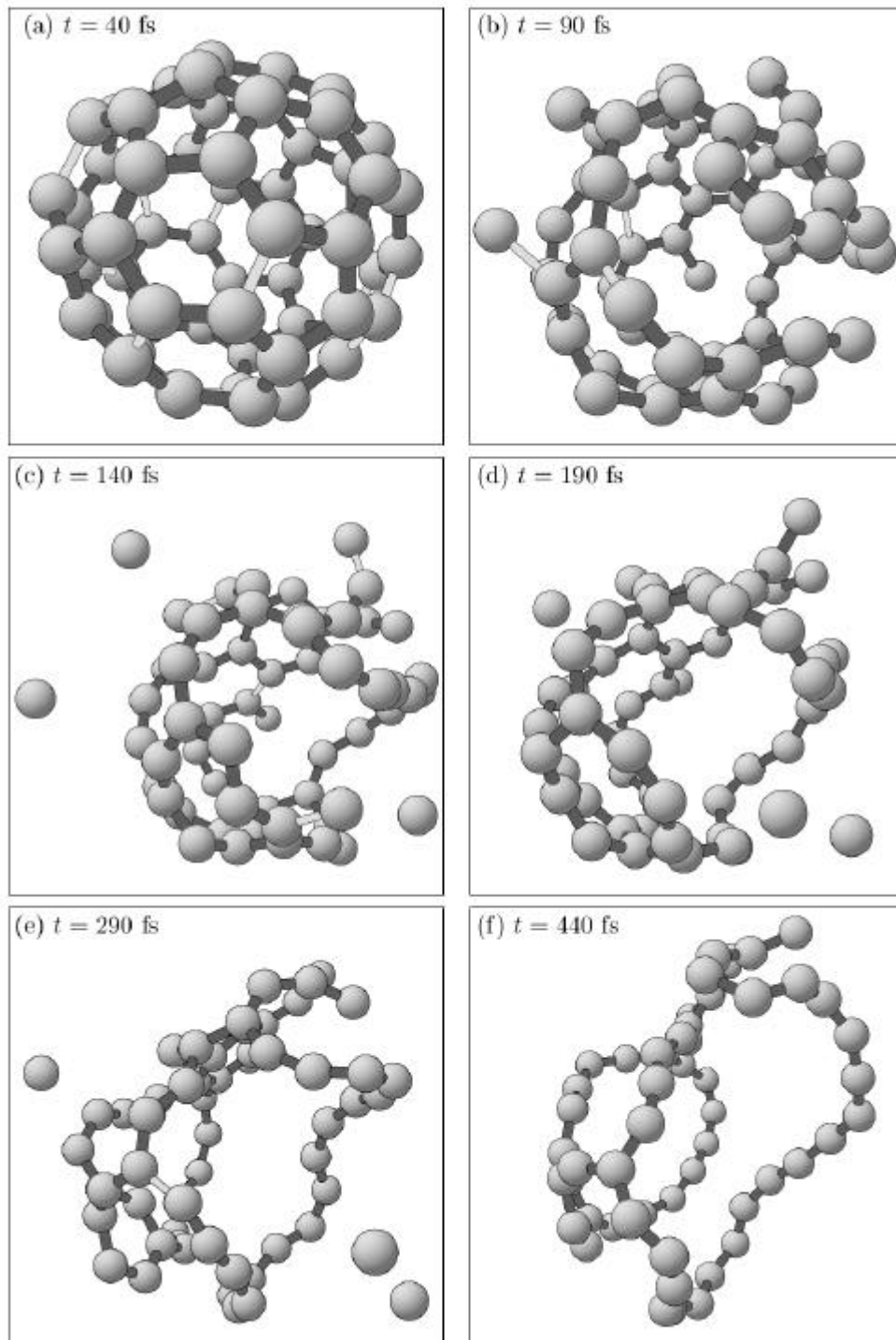


Abbildung 6: Fragmentation von C_{60} nach Absorption von 3.5 eV/Atom aus einem Laserpuls von $\tau=80$ fs. Der Fragmentationsprozess beginnt mit der Emission von Kohlenstoffatomen im Gegensatz zur thermischen Fragmentation, die durch die Emission von Dimeren charakterisiert ist. Das Resultat der Fragmentation sind Kohlenstoffketten.

UPII:

Das UPII wurde nicht bewilligt. Entsprechend wurden hier keine Untersuchungen durchgeführt.

(2) UPIII: Kurzzeitdynamik von Elektronen auf Oberflächen

Mittels Two-Photon-Photoemission-(2PPE)-Theorie und Boltzmann-Gleichung wurde erstmals die Anregungsdynamik in dünnen Filmen systematisch studiert. Dabei wurde in der Boltzmann-Gleichung (siehe Doktorarbeit R. Knorren) die Diffusion (ballistische Bewegung) der heißen Elektronen berücksichtigt. Absorptionsexperimente und Lebenszeitbestimmung (τ) für Au, Ag, Cu konnten durch unterschiedliche räumliche Absorption erklärt werden. Diese ergibt sich, wenn durch die Anregung des Oberflächenplasmons die Lichtenergie nur an der Oberfläche des Films absorbiert wird und erst anschließend über den ganzen Film verteilt wird (Oberflächenplasmon \rightarrow heiße Elektronen), während ohne Oberflächenplasmon-Anregung die Energie räumlich gleichmäßig im Film absorbiert wird. Die Resultate sind in Abbildung 7 gezeigt und sind von allgemeiner Bedeutung.

Weiter wurde ein Modell für die Lebenszeiten $\tau(\Delta\varepsilon)$ (wobei $\Delta\varepsilon$ die Photon-Anregungsenergie ist) in kleinen Teilchen und Nanopartikeln entwickelt. Man erhält für großes $\Delta\varepsilon$ quasi Landau-Fermi-Liquid-Verhalten, aber für kleines $\Delta\varepsilon$ charakteristische Abweichungen. Diese reflektieren die atomare Struktur und die Oberflächenzustände. Diese Studie wird fortgesetzt, um einige Probleme definitiv zu klären. Die 2PPE-Theorie (und verwandte Second Harmonic Generation (SHG)) wurde weiterentwickelt, um die Feldverstärkung an Oberflächen (und in Clustern) infolge von Plasmon-Anregung zu verstehen (siehe /TB01/ sowie Experiment G. Gerber u.a.^{4,5}). Eine detaillierte numerische Auswertung fehlt bis jetzt und ist geplant.

⁴ K. Ertel, U. Kohl, J. Lehmann, M. Merschdorf, W. Pfeiffer, A. Thon, S. Voll und G. Gerber, Appl. Phys. B **68**, 439 (1999).

⁵ J. Lehmann, M. Merschdorf, W. Pfeiffer, A. Thon, S. Voll und G. Gerber, J. Chem. Phys. **112**, 5428 (2000).

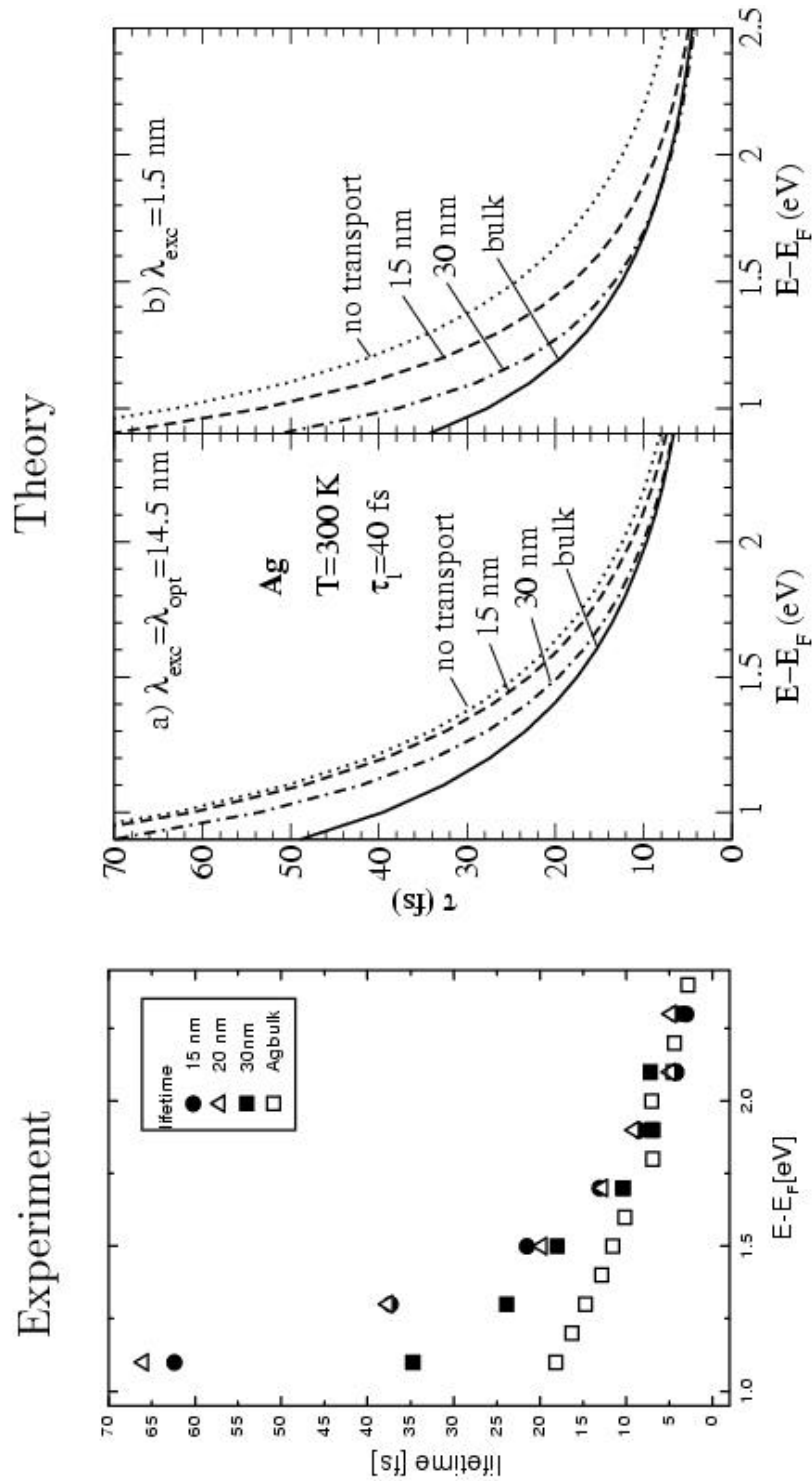


Abbildung 7: Relaxationszeit in Ag-Filmen unterschiedlicher Dicke. Links experimentelle Daten⁶, rechts theoretische Resultate für a) Anregung innerhalb der optischen Eindringtiefe $\lambda_{opt}=14.5$ nm und b) Anregung nur innerhalb von $\lambda_{exc}=1.5$ nm zur Simulation von Oberflächenanregungen. Die Temperatur ist $T=300$ K, die Laserpulsdauer 40fs.

⁶ M. Aeschlimann, M. Bauer, S. Pawlik, R. Knorren, G. Bouzerar und K. H. Bennemann, Appl. Phys. A **71**, 485 (2000).

(3) Andere durchgeführte Arbeiten

Im Rahmen des SFB 450 wurden in der auslaufenden Förderperiode folgende Arbeiten durchgeführt, die nicht zu den bewilligten Unterprojekten I und II gehören:

Entwicklung eines quanten-genetischen Algorithmus

Wir haben zum ersten Mal einen genetischen Algorithmus entwickelt, der in der Lage ist, bei komplizierten Systemen wie Mehrteilchen-Quantenproblemen eine erfolgreiche globale Suche zu erzielen. Unsere Methode erlaubt uns, z.B, den Grundzustand der zeitunabhängigen Schrödingergleichung für beliebige externe Potentiale effizient zu ermitteln. Diese Herangehensweise basiert auf dem Variationsprinzip. Die Grundzustandswellenfunktion eines gegebenen Hamiltonoperators im Ortsraum

$$\hat{H} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V(x)$$

wird mit einem Verfahren des „Überlebens der Tauglichsten“ bestimmt, wobei am Anfang eine Population von Wellenfunktionen steht. Für die Suche nach der „tauglichsten“ Wellenfunktion haben wir einen genetischen Algorithmus erweitert, sodass quantenmechanische Probleme behandelt werden können. Unter Verwendung dieses Algorithmus konnten wir die Grundzustandswellenfunktionen für verschiedene eindimensionale externe Potentiale berechnen. Die Wellenfunktionen werden bestimmt, indem der Erwartungswert der Energie

$$E[\mathbf{y}] = \frac{\langle \mathbf{y} | \hat{H} | \mathbf{y} \rangle}{\langle \mathbf{y} | \mathbf{y} \rangle}$$

minimiert wird.

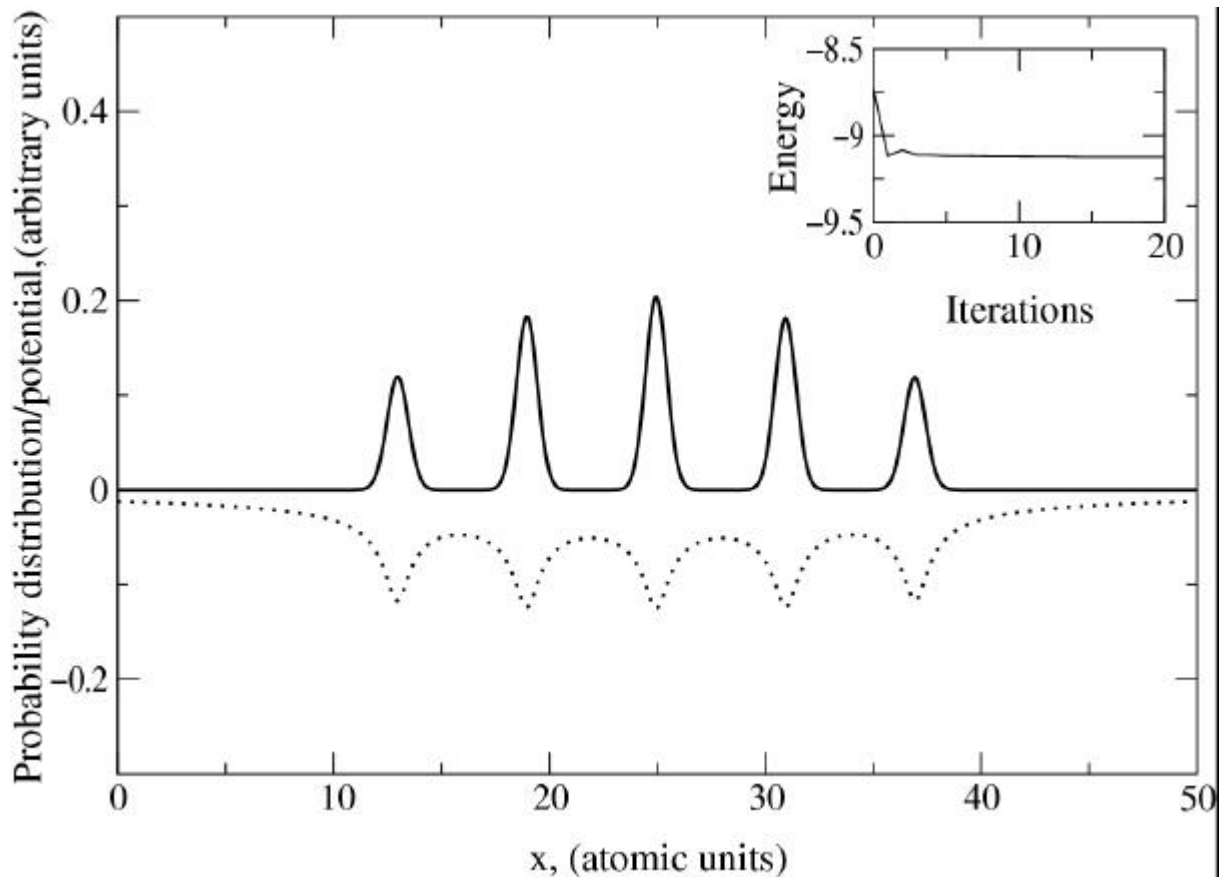


Abbildung 8: Berechnete Elektronendichte (durchgezogene Linie) für ein Elektron in einem Potential aus einer Kette positiver Ionen (gestrichelte Linie). Die Inset-Figur beschreibt das Konvergenzverhalten des Algorithmus.

Wir haben diesen quanten-genetischen Algorithmus erweitert, um Grundzustands-wellenfunktionen von Zweiteilchensystemen in einer und in zwei Dimensionen zu ermitteln.

Wir haben die Methode überprüft, indem wir den Hartree-Fock-Grundzustand von wechselwirkenden Zweiteilchensystemen in einer und in zwei Dimensionen bestimmt haben (siehe z.B. Abbildung 9). In allen Fällen sind unsere berechneten Elektronenverteilungen in guter Übereinstimmung sowohl mit exakten analytischen als auch mit numerischen Resultaten /GG00/, /GG01/.

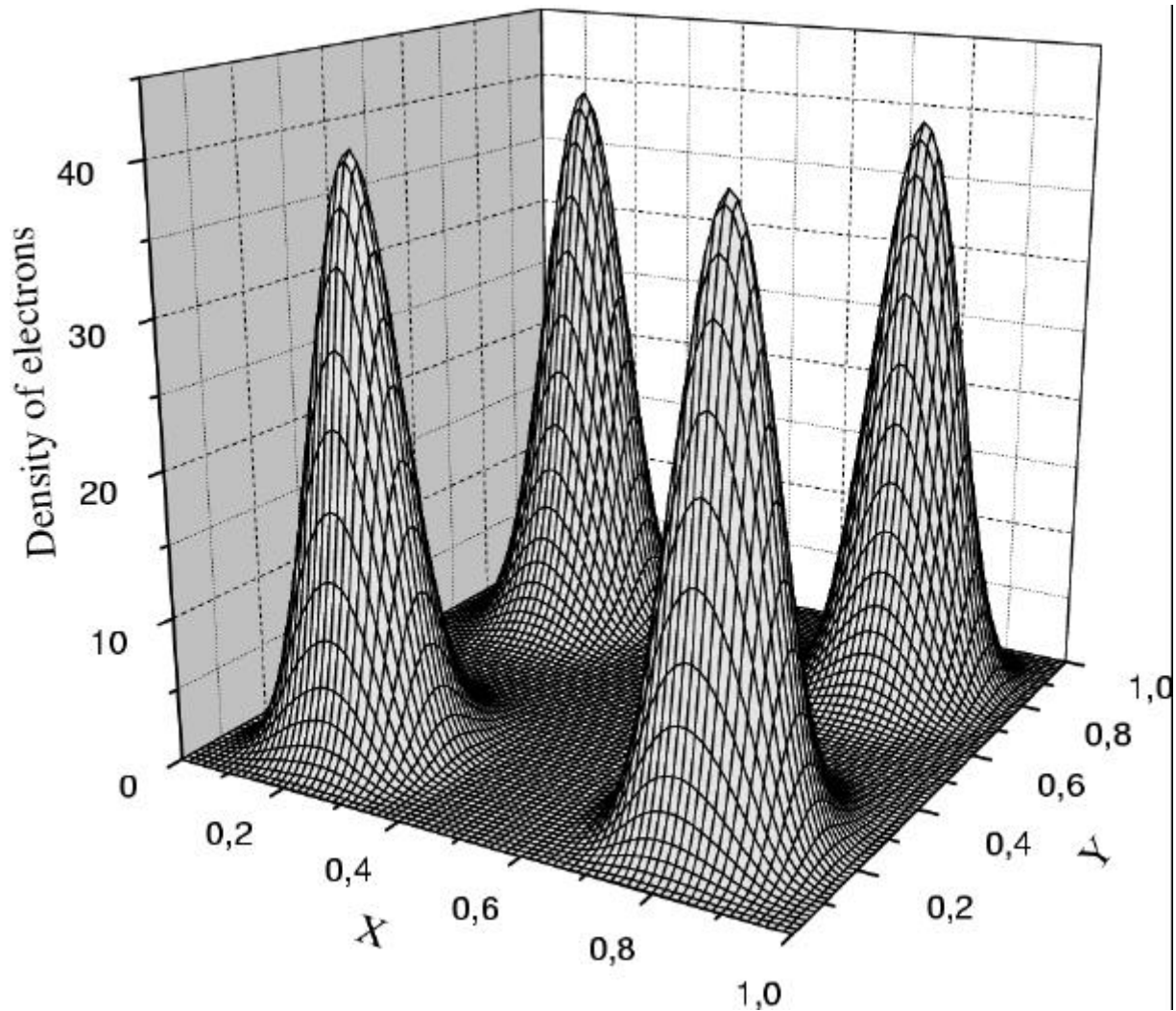


Abbildung 9: Elektronendichteverteilung $\rho(x,y)$, berechnet mit Hilfe von quanten-genetischen Algorithmen für die Slaterdeterminante niedrigster Energie von zwei wechselwirkenden, spinlosen Elektronen in einem quadratischen Quantenpunkt im Grenzfall niedriger Dichte (großer Kasten). Bemerkenswert ist die Bildung eines Wignermoleküls.

Optimierung von lichtinduzierten Ladungstransferprozessen in Quantenpunkten mit Hilfe von „pulse shaping“

Um zu zeigen, dass der genetische Algorithmus auch verwendet werden kann, um Probleme in Verbindung mit kohärenter Kontrolle zu lösen, haben wir sie auf die folgende Situation angewandt: Wir haben die Form eines ultrakurzen elektrischen Feldes optimiert, das auf einen doppelten Quantenpunkt wirkt, sodass der feldinduzierte Strom maximal wird. Der induzierte

Strom war die sogenannte Fitness-Funktion für unseren Algorithmus. Da die lichtinduzierte Elektronendynamik innerhalb des doppelten Quantenpunktes und an den metallischen Kontakten sehr kompliziert ist, ist die Optimierung des ultrakurzen Feldes extrem erschwert. Trotzdem ist es dem Algorithmus gelungen, die Form des Feldes zu finden, die einen Strom induziert, der den von Gaußpulsen erzeugten verdreifacht. Gleichzeitig ist es uns gelungen, die Elektron-Tunneldynamik innerhalb des doppelten Quantenpunktes zu kontrollieren. Im folgenden werden die Rechnungen im Detail beschrieben.

Wir untersuchen den zeitabhängigen Ladungstransfer zwischen Quantenpunkten, der durch einen ultrakurzen Puls elektromagnetischer Strahlung ausgelöst wird. Als Modellsystem verwenden wir zwei schwach gekoppelte Quantenpunkte (QP), die jeweils über eine Tunnelbarriere mit einem metallischen Reservoir verbunden sind. Die angelegten Spannungen sind so gewählt, daß der Zustand im ersten QP besetzt ist und der im zweiten unbesetzt. Da die Zustände im linken und rechten QP nicht entartet sind, kann kein Ladungstransfer zwischen den Punkten stattfinden und es fließt kein Strom durch das System. Erst wenn ein oszillierendes elektrisches Feld angeschaltet wird, dessen Frequenz gerade dem Energieunterschied der Zustände entspricht, kann durch die Absorption von Photonen Ladungstransfer stattfinden. Es treten Rabi-Oszillationen des Elektrons zwischen den Quantenpunkten 1 und 2 auf. Da diese sehr schnell abklingen und sich schon nach kürzester Zeit eine Gleichbesetzung der QP einstellt, schlagen wir vor, zur Beobachtung sehr kurze Strahlungspulse zu verwenden.

Der Hamiltonoperator des an das externe Feld angekoppelten Doppelquantenpunktes ist

$$H_{DQD} = \sum_{i=1}^2 \mathbf{e}_i(t) c_i^+ c_i + w(c_1^+ c_2 + c_2^+ c_1)$$

wobei c_i^+ und c_i der Erzeugungs- bzw. Vernichtungsoperator für ein Elektron im Quantenpunkt i sind. Das äußere elektrische Feld verursacht zeitliche Oszillationen der Energieniveaus

$$\mathbf{e}_i(t) = (-1)^i / 2 (\Delta \mathbf{e} + A(t) \cos \omega t)$$

$\Delta \mathbf{e} = \mathbf{e}_2 - \mathbf{e}_1$ ist die Energiedifferenz zwischen den On-Site-Energien der Quantenpunkte. $A(t) \cos \omega t$ ist das zeitabhängige externe Feld, welches die Energieniveaus gegeneinander oszillieren läßt. Die Amplitude $A(t)$ ist ebenfalls zeitabhängig und beschreibt die Pulsform. Der Hamiltonoperator der metallischen Reservoirs und der Tunnelbarrieren ist

$$H_{RT} = \sum_{\substack{k \in l \\ l=L,R}} \mathbf{e}_{kl} c_{kl}^+ c_{kl} + \sum_{k \in L} V_{kL} (c_{kL}^+ c_1 + c_1^+ c_{kL}) + \sum_{k \in R} V_{kR} (c_{kR}^+ c_2 + c_2^+ c_{kR})$$

Der Operator c_{kl}^+ mit $l = L, R$ erzeugt ein Elektron mit Impuls \mathbf{k} im Reservoir l . V_{kL} und V_{kR} sind Matrixelemente, die den Tunnelvorgang zwischen den Reservoiren und den Quantenpunkten beschreiben.

Da das Bewegungsgleichungssystem, das sich aus dem Gesamthamiltonoperator ergibt, zur numerischen Lösung sehr viel Rechenzeit in Anspruch nimmt, machen wir die Annahme, dass sich im Reservoir auf der rechten Seite ein sehr breites Band unbesetzter Zustände befindet, so dass ein einmal vom zweiten Quantenpunkt in das rechte Reservoir getunneltes Elektron nicht mehr zurückspringt. Deshalb beschreiben wir diesen Tunnelvorgang durch eine

Ratengleichung mit der Transferrate $\Gamma_2 = 2\mathbf{p}/\hbar \mathbf{r}_R(\mathbf{e}) |V_{kR}|^2$. \mathbf{r}_R ist die Zustandsdichte im Reservoir auf der rechten Seite. Ganz entsprechend nehmen wir für das linke Reservoir ein sehr breites Band besetzter Zustände an und erhalten eine Tunnelrate $\Gamma_1 = 2\mathbf{p}/\hbar \mathbf{r}_L(\mathbf{e}) |V_{kL}|^2$.

Das von uns verwendete Differentialgleichungssystem ist

$$\frac{\partial N_L}{\partial t} = -\frac{\Gamma_1}{\hbar} (1 - n_1(t))$$

$$\frac{\partial}{\partial t} c_1(t) = -\frac{i}{\hbar} \mathbf{e}_1(t) c_1(t) - \frac{i}{\hbar} w c_2(t) + \frac{\Gamma_1}{2\hbar} \frac{1 - n_1(t)}{n_1(t)} c_1(t)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} c_2(t) = -\frac{i}{\hbar} \mathbf{e}_2(t) c_2(t) - \frac{i}{\hbar} w c_1(t) - \frac{\Gamma_2}{2\hbar} c_2(t)$$

$$\frac{\partial N_R}{\partial t} = -\frac{\Gamma_2}{\hbar} n_2(t)$$

N_L bzw. N_R sind die Besetzungen des linken bzw. rechten Reservoirs, wobei nur die

Differenzen zu den Anfangswerten interessant sind. $n_1(t) = \langle c_1^+(t) c_1(t) \rangle$ ist die Besetzung

des ersten Quantenpunkts. Der Tunnelprozess zwischen linkem Reservoir und erstem

Quantenpunkt wird durch diese Bewegungsgleichungen nicht völlig korrekt beschrieben. Die wesentlichen Charakteristika des Systems werden aber gut wiedergegeben.

Mit Hilfe des genetischen Algorithmus haben wir den optimalen Puls ermittelt, der die transferierte Ladung maximiert.

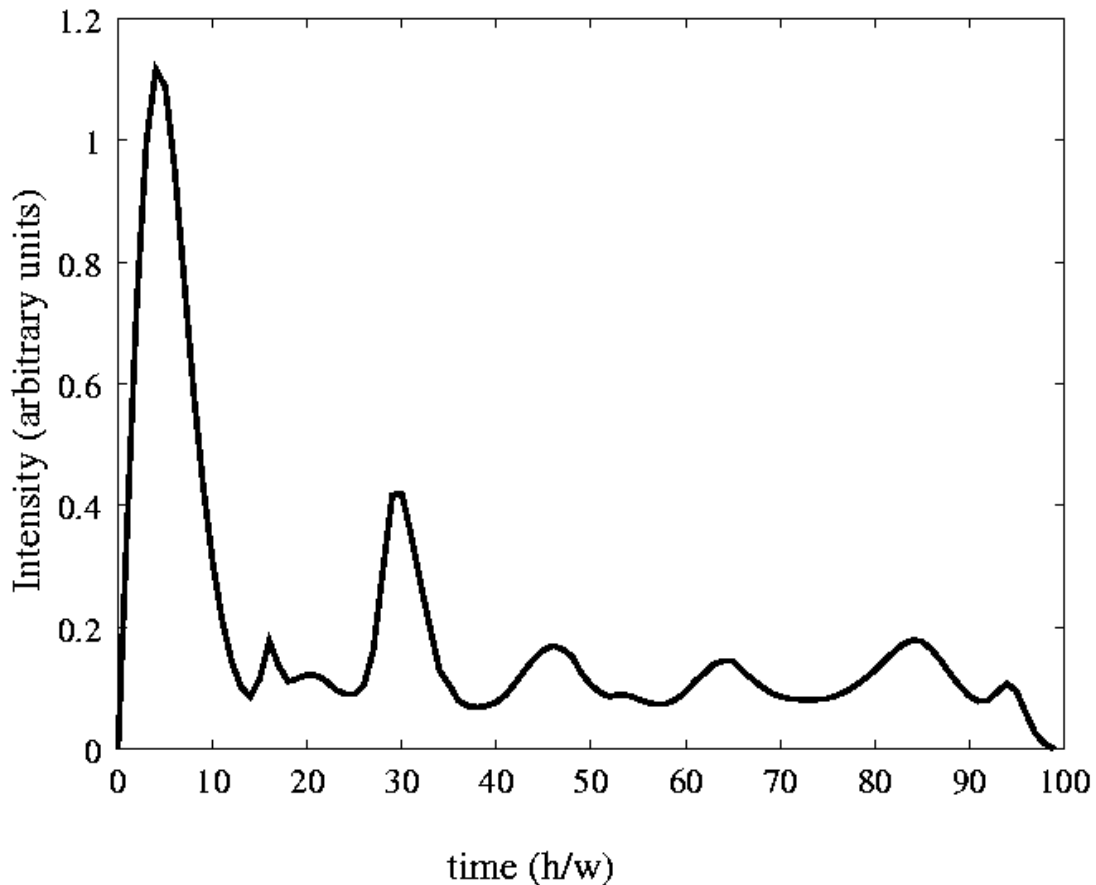


Abbildung 10: Optimierte Pulsform, die einen maximalen Ladungstransfer über den doppelten Quantenpunkt bei vorgegebener Energie und vorgegebener Dauer erzielt.

In Abbildung 10 zeigen wir die optimale Pulsamplitude $A(t)$, die mit der Randbedingung kompatibel ist, dass die Gesamtdauer gleich 100 Zeiteinheiten sein muss. In Abbildung 11 wird die daraus resultierende Besetzung im zweiten Quantenpunkt gezeigt. Dabei ist es bemerkenswert, dass es mit dem optimalen Puls gelingt, diese Besetzung (die am Anfang gleich 0 ist) zum frühest möglichen Zeitpunkt in die Nähe von 1 steigen zu lassen und sie dann so lang wie möglich auf 1 zu halten. Die während des Pulses transferierte Ladung wird in der Abbildung ebenfalls gezeigt /GSG00/.

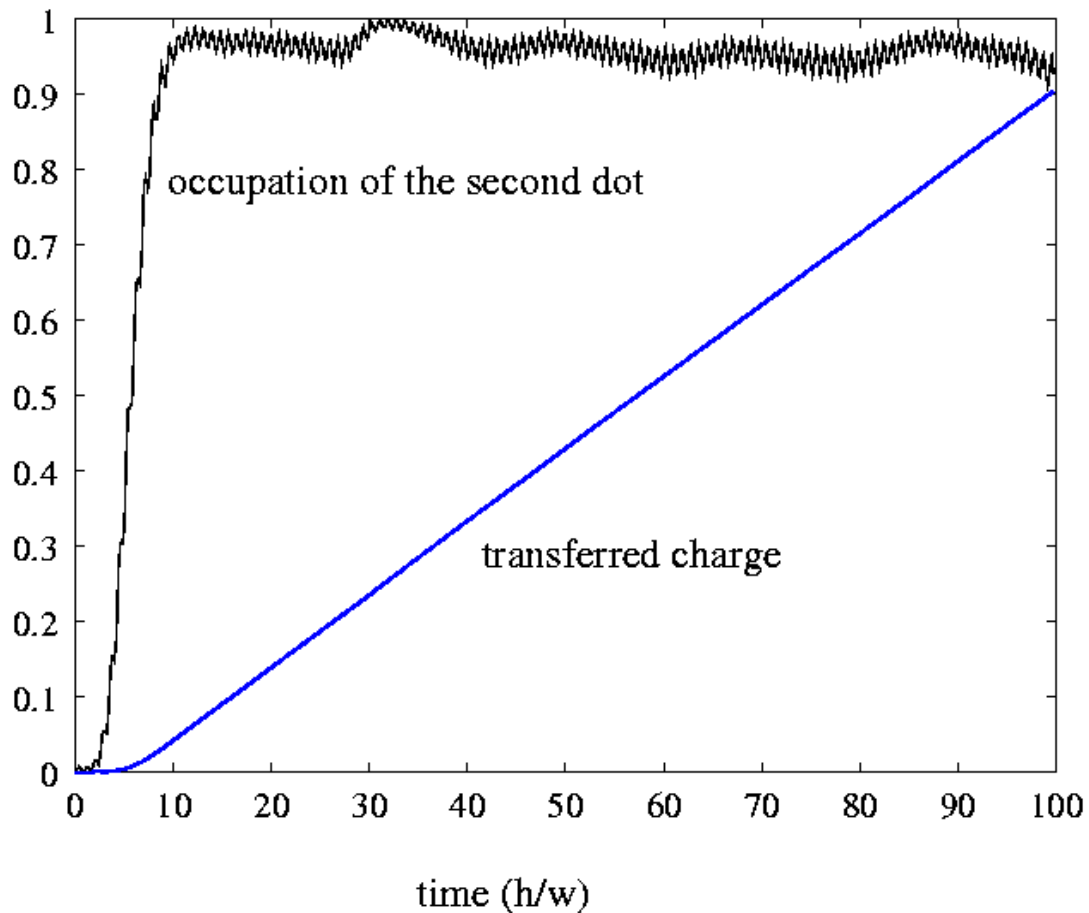


Abbildung 11: Verhalten der elektronischen Besetzung im 2. Quantenpunkt (am Anfang leer) und der transportierten Ladung als Funktion der Zeit für den in Abbildung 10 gezeigten Puls.

Eigene Publikationen

/JGB99a/ H. O. Jeschke, M. E. Garcia und K. H. Bennemann, Microscopic analysis of the laser induced femtosecond graphitization of diamond, *Phys. Rev.B* 60, R3701 (Rapid Communication) (1999).

/JGB99b/ H. O. Jeschke, M. E. Garcia und K. H. Bennemann, Theory for laser induced ultrafast phase transitions in carbon, *App. Phys. A* 69, S49 (1999).

/ZGB99/ K. Zickfeld, M. E. Garcia und K. H. Bennemann, Theoretical study of the laser induced femtosecond dynamics of small Si_n clusters, *Phys. Rev. B* 59, 13422 (1999).

/JGB00/ H. O. Jeschke, M. E. Garcia und K. H. Bennemann, Theory for the ultrafast ablation of graphite films, eingereicht bei *Phys. Rev. Lett.* (2000).

/GG00/ I. Grigorenko und M. E. Garcia, An evolutionary algorithm to calculate the ground state of a quantum system, *Physica A* 284, 131 (2000).

/GG01/ I. Grigorenko und M. E. Garcia, Ground wave functions of two particle systems determined using quantum genetic algorithms, *Physica A* 291, 439 (2001).

/GA01/ M. E. Garcia, Theoretical description of ultrafast phenomena in clusters, *Appl. Phys. A* 72, im Druck (2001).

/GSG00/ I. Grigorenko, O. Speer und M. E. Garcia, Coherent control of the current through a double quantum dot, in Vorbereitung.

/JGB01a/ H. O. Jeschke, M. E. Garcia und K. H. Bennemann, Ultrafast energy absorption of graphite and diamond, in Vorbereitung.

/JGB01b/ H. O. Jeschke, M. E. Garcia und K. H. Bennemann, Calculation of the damage threshold of Silicon upon excitation with single femtosecond laser pulses, in Vorbereitung.

/JGB01c/ H. O. Jeschke, M. E. Garcia und K. H. Bennemann, Ultrafast melting of graphite: creation of low-density liquid carbon, in Vorbereitung.

/JGA01/ H. O. Jeschke, M. E. Garcia und J. A. Alonso, Nonthermal fragmentation of C₆₀, in Vorbereitung.

/TB01/ C. Timm und K. H. Bennemann, Response theory for time-resolved second-harmonic generation and two-photon photoemission: Dependence on the pulse shape of the exciting light field, eingereicht bei *Phys. Rev. B*.

Dissertationen

R. Knorren, Theory for Ultrafast Dynamics of Nonequilibrium Electrons in Noble and Transition Metals, April 2000 (Publikation Shaker Verlag, Juli 2000).

H. O. Jeschke, Theory for optically created nonequilibrium in covalent solids, Juni 2000 (Publikation Logos Verlag, September 2000).

Eingeladene Vorträge auf internationalen Tagungen

K. H. Bennemann
Nichtlineare Magnetooptik,
Internationale Konferenz Magnetism New Century, Stockholm, Schweden, Juli 1999.

K. H. Bennemann

Kurzzeitdynamik,
Symposium, International Centre for Theoretical Physics, Trieste, Italien, Juni 1999.

K. H. Bennemann
Magnetism in Clusters,
Symposium University of Chicago, August 1999.

K. H. Bennemann
Magnetism in Clusters,
Meeting of the Mexican Physical Society, University of Mexico, Mexico City; Univ. S. L.
Potosi, Mexiko, Januar 2000.

K. H. Bennemann
Ultrafast Dynamics,
CNRS Grenoble, Frankreich, November 1999.

K. H. Bennemann
Magnetism,
Nato Conference, Yalta, Ukraine, Mai 1999.

K. H. Bennemann
Magnetic Clusters,
Symposium Universität Oldenburg, Juni 2000.

M. E. Garcia
Microscopic Analysis of Laser Induced Nonequilibrium Phase Transitions,
5th International Conference on Laser Ablation (COLA 99); Göttingen, Juli 1999

M. E. Garcia
Interaction of Ultrashort Laser Fields with Clusters,
5th International Symposium on Theory of Atomic and Molecular Clusters (TAMC3), Berlin,
Oktober 1999

M. E. Garcia
Theorie für Ultrakurzzeitphänomene in Clustern,
DPG-Tagung Bonn (Hauptvortrag), April 2000

M. E. Garcia
Theory for Ablation and Structural Changes induced by Femtosecond Laser Pulses,
The European Conference on Lasers and Electro-Optics, CLEO/Europe 2000,
Nizza, September 2000

M. E. Garcia
Interaction of Clusters with Femtosecond Laser Pulses,
Workshop on Dynamical Approaches in Atomic and Cluster Physics,
Dresden, Dezember 2000

Anzahl der sonstigen Vorträge und Posterpräsentationen

H. O. Jeschke (2), I. Grigorenko (2), M. E. Garcia (15), K. H. Bennemann (5).