

Teilprojekt C4: Theorie zur Kontrolle photoinduzierter Ultrakurz-zeitphänomene in kleinen Clustern und im Festkörper

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

Dienstanschrift: Freien Universität Berlin, Institut für theoretische Physik, Arnimallee 14
14195 Berlin

Kommunikation: Tel.: 0049 30 838 55503 FAX: 0049 30 838 56799
E-Mail: khb@physik.fu-berlin.de
Internet: <http://www.physik.fu-berlin.de/de:w/forschung/gruppen/ag/bennemann.html>

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

Dienstanschrift: Freien Universität Berlin, Institut für theoretische Physik, Arnimallee 14
14195 Berlin
Internet: www.physik.fu-berlin.de/~garcia

Kommunikation: Tel.: 0049 30 838 56124 FAX: 0049 30 838 56799
E-Mail: garcia@physik.fu-berlin.de

Fachgebiet und Arbeitsrichtung: **Theoretische Physik, Festkörperphysik, Vielteilchentheorie, Computational Physics**

Summary of results in the period 2001-2004

During the last funding period we have studied a large variety of problems related to the interaction of time-dependent fields with matter and its control.

We have obtained analytical and numerical results and developed new methods. In particular, we have addressed the following problems:

- 1) Development of a theory for optimal of time-averaged quantities.
- 2) Study of ultrafast laser induced structural effects in C_{60} , graphite and diamond under different pressure conditions.
- 3) Study of the optimal control of Landau-Zener processes in systems with surface crossing.
- 4) Application of genetic algorithms to control and quantum mechanical problems.
- 5) Coherent control of higher order antibunching.

Übersicht über Ergebnisse aus den Jahren 2001-2004

In der letzten Förderperiode haben wir viele verschiedene Probleme im Bereich der Wechselwirkung von zeitabhängigen Feldern mit der Materie und deren Kontrolle.

Wir haben sowohl analytische als auch numerische Resultate erzielt, und wir haben neue Methoden entwickelt. Insbesondere folgende Probleme wurden studiert:

- 1) Entwicklung einer Theorie für die optimale Kontrolle von zeitlich gemittelten Größen.
- 2) Untersuchung von laserinduzierten strukturellen Effekten in C_{60} , Graphit und Diamant unter verschiedenen Druckbedingungen.
- 3) Optimale Kontrolle von Landau-Zener-Prozessen.
- 4) Anwendung von genetischen Algorithmen auf quantenmechanische Probleme und auf kohärente Kontrolle.
- 5) Kohärente Kontrolle von Antibunching höherer Ordnung.

Einzelberichte aus dem letzten Berichtszeitraum (2001-2004)

1) Entwicklung einer Theorie für die optimale Kontrolle von zeitlich gemittelten Größen.

Wir haben eine allgemeine Variationstheorie entwickelt, die in der Lage ist, die optimale Kontrolle von physikalischen Größen über endliche Zeitintervalle zu beschreiben. In unserer Theorie, die eine nicht triviale Verallgemeinerung früherer Ansätze darstellt, und sie als Grenzfälle beschreibt, werden die Kontrollfelder als Lösungen von Euler-Lagrange-Gleichungen hoher Ordnung bestimmt.

$$-\lambda_1 \frac{d^4 \theta}{dt^4} + \lambda \frac{d^2 \theta}{dt^2} - \frac{\mu^2}{2} \frac{\partial A(\rho)}{\partial \theta} = 0$$

Differentialgleichung vierter Ordnung für die Bestimmung der Pulsfläche θ des optimalen Feldes. A ist die Größe, die über ein endliches Zeitintervall kontrolliert wird. λ_1 und λ_2 sind Lagrange-Multiplikatoren, und μ ist das Dipolmoment des Systems.

Wir haben diese Differentialgleichungen numerisch (und in bestimmten Fällen auch analytisch) gelöst. Die Theorie wurde auf offene Zweiniveausysteme angewandt. Den Einfluss von Relaxationsprozessen auf die optimale Kontrolle konnten wir quantitativ bestimmen /GGB02/, /GG04a/, /GG04b/.

2) **Untersuchung von laserinduzierten strukturellen Effekten in C₆₀, Graphit und Diamant unter verschiedenen Druckbedingungen (auf Englisch)**

A theoretical study of the subpicosecond fragmentation of C₆₀ clusters in response to ultrafast laser pulses was presented. We simulated the laser excitation and the consequent nonequilibrium relaxation dynamics of the electronic and nuclear degrees of freedom. The first stages of the nonequilibrium dynamics are dominated by a breathing mode followed by the cold ejection of single C atoms, in contrast to the dimer emission which characterizes the thermal relaxation. We also determined the nonequilibrium damage thresholds as a function of the pulse duration.

/JGA02/

The ultrafast time dependence of the energy absorption of covalent solids upon excitation with femtosecond laser pulses was theoretically analyzed. We use a microscopic theory to describe laser induced structural changes and their influence on the electronic properties. We show that from the time evolution of the energy absorbed by the system important information on the electronic and atomic structure during ultrafast phase transitions can be gained. Our results reflect how structural changes affect the capability of the system to absorb external energy.

/JGB02/

A theoretical description of the ultrafast ablation of diamond and graphite was presented. Laser induced lattice deformations and melting are described with the help of molecular dynamics simulations on time dependent potential energy surfaces derived from a microscopic electronic Hamiltonian. Thermalization effects are explicitly taken into account. We calculate the ablation thresholds as a function of the pulse duration for femtosecond pulses. For both materials we obtain smoothly increasing thresholds for increasing duration. The damage and ablation mechanisms are discussed.

/JG02/.

The laser induced melting of graphite at normal pressure and under high pressure was also studied. We analyzed the mechanisms for the ultrafast melting in both cases. Our results show that the laser-induced melting process occurs in two steps: (i) destruction of the graphite sheets via bond breaking, and (ii) merging of the melted layers. The separation of the two steps is more evident for graphite under pressure (10GPa), but is also present in graphite films at normal pressure. The melting phase is a low-density carbon phase which remains stable under high pressure, but is unstable with an ultrashort life-time under normal pressure.

/JG03/

3) Optimale Kontrolle von Landau-Zener-Prozessen

Wir haben gezeigt, dass die Amplitude und Phase von Femtosekundenlaserpulsen optimiert werden koennen, um einen hundertprozentigen Landau-Zener-Effekt in Systemen mit Potential-Kreuzungen zu induzieren. Mit Hilfe von genetischen Algorithmen konnten optimale Pulse konstruieren, die vollstaendige Populationstransferprozesse induzieren und somit einen effektiven nichtadiabatischen Landau-Zener-Prozess moeglich machen.

Um die Wellenpaketdynamik während und nach der Anregung durch den Femtosekundenpuls zu simulieren, haben wir die M gekoppelten zeitabhängigen Schrödingergleichungen

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi_i = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \Psi_i}{\partial x^2} + U_i(x) \Psi_i + \sum_{i \neq j} \tilde{d}_{ij}(x, t) \Psi_j$$

numerisch integriert. M ist die Anzahl der berücksichtigten Potentialflächen, und $\Psi_i(x, t)$ beschreibt die Wahrscheinlichkeitsamplitude auf der Potentialfläche i . In unserem Fall haben wir die Kreuzung von 2 diabatischen Zuständen und 2 „Hilfzustände“ berücksichtigt. Die zeitabhängige Kopplung zwischen den Potentialenergieflächen wird gegeben durch

$$\tilde{d}_{ij}(x, t) = -E(t) d_{ij}(x), \quad \text{mit} \quad d_{ij}(x) = d_{ji}^*(x).$$

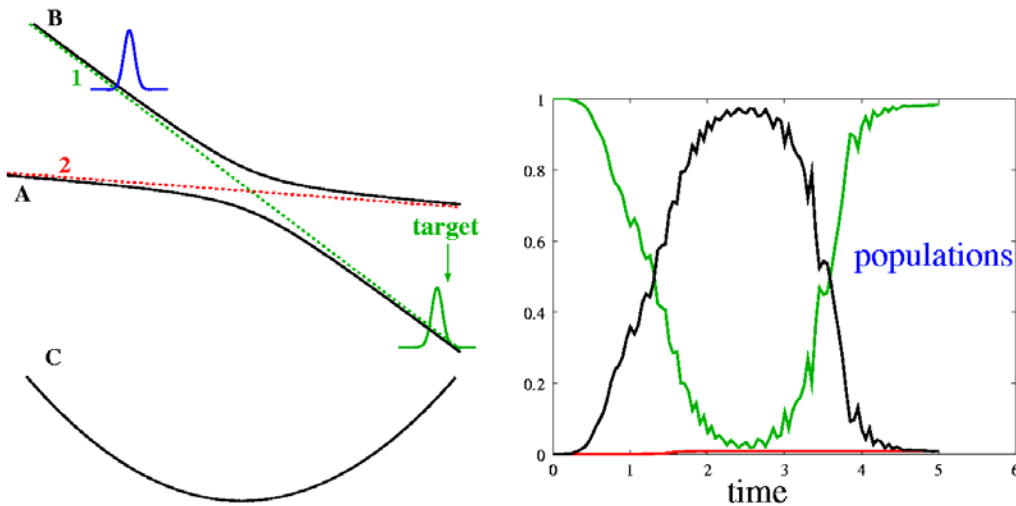
In die Kopplung geht nun das Laserfeld mit zeitabhängiger Amplitude und Phase ein:

$$E(t) = A(t) \sin\left(\omega t + \gamma(t)\right).$$

Die Fitness-Funktion $F(t)$ war gegeben durch

$$F(t) = \sum_i w_i \int_{a_i}^{b_i} |\Psi_i(x, t)|^2 dx.$$

wobei die Gewichte w_i festlegen, für welchen Zustand des Systems die optimale Pulsformen bestimmt werden sollen. /PGG04/



Die Abbildungen zeigen das Energieschema und die Populationstransferprozesse, die das optimale Feld induziert. Das Anfangswellenpaket befindet sich auf der Potentialfläche 1. Der Targetzustand wird angegeben. Um die Fitnessfunktion zu maximieren muss die Kreuzung vermieden werden. Dies geschieht, indem die Population hin zum Zustand C und zurück transferiert wird.

4) Anwendung von genetischen Algorithmen auf quantenmechanische Probleme und auf kohärente Kontrolle.

Wir haben unseren quantengenetischen Algorithmus (Siehe Bericht 1998-2001) weiterentwickelt, um Zustandssummen in Mehrteilchen-Quantensystemen zu bestimmen.

Die Methode ist auch in der Lage, das Anregungsspektrum des Systems genau zu bestimmen.

Diese Herangehensweise basiert auf dem Variationsprinzip. Die Zustandssumme Z des Systems ist ein Funktional der Wellenfunktionen und wird maximal, wenn diese mit den Eigenfunktionen des Systems übereinstimmen. Dieses Variationsprinzip ist die Voraussetzung für die Anwendung unserer Methode. Z wird mit einem Verfahren des „Überlebens der Tauglichsten“ bestimmt, wobei am Anfang eine Population von Wellenfunktionen steht.

Wir haben die Methode auf ein System aus wenigen wechselwirkenden Teilchen in einer Dimension angewandt. Wir haben die Bildung eines Wigner-Kristalls und dessen Schmelzen als Folge der Quantenfluktuationen untersucht /GG02/.

Um zu zeigen, dass diese Methode 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 /GSG02/.

5) Kohärente Kontrolle von Antibunching höherer Ordnung.

Wir haben ein allgemeines Kriterium für die Existenz und Erkennung von Antibunching höherer Ordnung hergeleitet. Antibunching ist ein Quanteneffekt ohne klassisches Analogon. Der Effekt kann bei Photonen klar visualisiert werden. Thermische Photonen werden in Bündeln detektiert. Das heißt, dass sie Bunching zeigen. Antibunching bedeutet, dass die Photonen in einem Zustand sind, in dem sie eins nach dem anderem einzeln detektiert werden. Quellen für einzelne Photonen müssen einen hohen Grad an Antibunching zeigen.

Wir haben gezeigt, dass Photonenzustände, die das von uns hergeleitete Kriterium erfüllen, einen hohen Grad an Antibunching besitzen. Wir haben die Theorie auf die Wechselwirkung von intensiven elektromagnetischen Feldern mit einem nichtlinearen Medium angewandt. Für ein nicht absorbierendes Material mit Nichtlinearitäten dritter Ordnung kann der Grad an Antibunching durch die Phase des äußeren Feldes kontrolliert werden /PG04/.

6) Simulationen zur Herstellung von Diamant mit Hilfe von Femtosekundenpulsen.

Bei der Begutachtung zur auslaufenden Förderperiode haben wir die theoretischen Gutachter ausdrücklich darauf hingewiesen, dass wir die beantragte Postdocstelle unbedingt benötigen, um das Vorhaben bzgl. Herstellung von Diamant durchführen zu können. Da die Postdocstelle nicht bewilligt wurde, haben wir dieses Projekt komplett aus dem Arbeitsprogramm gestrichen.

Wir werden diese Untersuchung im Rahmen anderer Programme durchführen.

Eigene Veröffentlichungen

/GGB02/ I. Grigorenko, M. E. Garcia and K. H. Bennemann, Theory for the optimal control of time averaged quantities in open quantum systems, Phys. Rev. Lett. 89, 233003 (2002).

/GG04a/ M. E. Garcia and I. Grigorenko, Analytical solution of the optimal laser control problem in two-level systems, submitted to J. Phys. B.

/GG04b/ I. Grigorenko and M. E. Garcia, Optimal control of multiphoton processes, in Vorbereitung.

/JGB02/ H. O. Jeschke, M. E. Garcia und K. H. Bennemann, Time dependent energy absorption changes during ultrafast lattice deformation, J. Appl. Phys. 91, 18 (2002).

/JGA02/ H. O. Jeschke, M. E. Garcia and J. A. Alonso, Nonthermal fragmentation of C60, Chem. Phys. Lett. 352, 154-162 (2002).

/JG02/ Harald O. Jeschke and Martin E. Garcia, Theoretical description of the ultrafast ablation of diamond and graphite: dependence of thresholds on pulse duration, Applied Surface Science 197-198, 107-113 (2002)

/JG03/ M. E. Garcia and H. O. Jeschke, Theoretical approach to the laser induced melting of graphite under different pressure conditions, Applied Surface Science 208-209, 61 (2003).

/PGG04/ M. Pietrzyk, I. Grigorenko and M. E. Garcia, Optimal control of population transfer to enhance the Landau-Zener effect, in Vorbereitung.

/GSG02/ I. Grigorenko, O. Speer and M. E. Garcia, Coherent control of photon assisted tunneling between quantum dots: a theoretical approach using genetic algorithms, Phys. Rev. B 65, 235309 (2002).

This paper was selected for the June 10, 2002 issue of the Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology and for the June 2002 issue of the Virtual Journal of Ultrafast Science.

/GG02/ I. Grigorenko and Martin E. Garcia, Calculation of the partition function using quantum genetic algorithms, Physica A 313, 463-470 (2002).

/PG04/ A. Pathak and M. E. Garcia, Coherent control of higher order antibunching, in Vorbereitung.

Abgeschlossene Dissertationen:

[Grig02] Iliia Grigorenko, Theory for ultrafast dynamics and optimal control of electrons in nanostructures, *Fachbereich Physik der FU Berlin* (Nov. 2002). Betreuer: K. H. Bennemann und M. E. Garcia.

Mitarbeiter:

Bennemann, K., Garcia, M., Grigorenko, I., Jensen, P., Jeschke, H., Pietrzyk, A., Pathak, A.,

