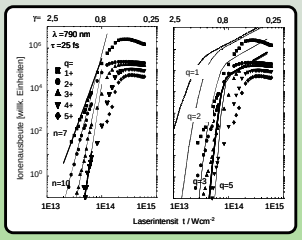
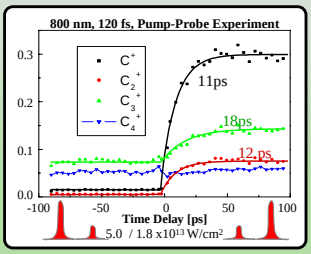
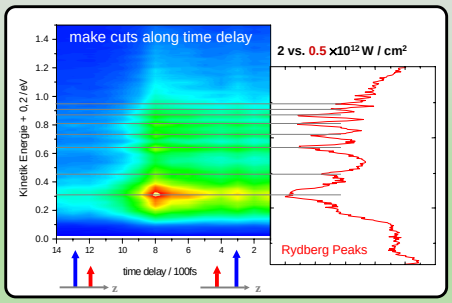
UP1: Analyse und Kontrolle photoinduzierter Anregungs- und Fragmentationsprozesse in C_{60}

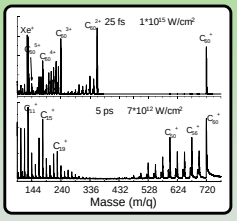
Kooperationen: TP A2, C2, A6



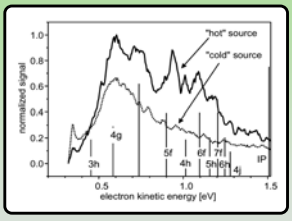
C_{60}^{q+} Ionenausbeuten als Funktion der Laserintensität bei 790nm, 25fs. Links: Die eingezeichneten Geraden entsprechen einem sequentiellen Multiphotonenprozess vom q- zum (q+1)-fach geladenen C_{60} Ion. Rechts: Durchgezogene Linien = ADK Formel.







Multiphotonenionisation und Fragmentation von C_{60} bei den Pulsdauern 25fs and 5ps (λ=790nm). Die Energie des Laserpulses ist in beiden Fällen gleich.



Vergleich des Photoelektronensignals als Funktion der kinetischen Elergie aus heißem (770K) und kaltem (80K) C_{60}.

Ziele

Quantitatives Verständnis experimenteller Ergebnise aus TP2

- **Aufklärung des Mechanismus der nichtresonanten Anre-gung von Rydbergzuständen in C_{60}: Rolle der Vibrations-freiheitsgrade?**
- **Quantitatives Verständnis der MPI-Sättigungs-intensitäten: ADK-Formel unzureichend.**
- **Untersuchung der nichtstatistischen Fragmentation in C^+, C_2^+, C_3^+ auf ps-Zeitskala: Mechanismus? Abhängigkeit von Laserparametern/Pulsform.**

Kontrolle durch geformte Pulse

- **Bestimmung optimaler Pulsformen zur selektiven Anregung der Kanäle Vielfachionisation/Fragmentation (jenseits der Schwellenintensität für das Auftreten von C_{60}^{2+} in Kooperation mit TP A2**
- **Bestimmung optimaler Pulsformen zur Erzeugung kollektiver Anregungen (Plasmonen) in Metall-Clustern, Verschiebung der Plasmafrequenz durch Ionisation während des Pulses in Kooperation mit TP A6**

Extrapolation der Methode zu höheren Intensitäten

- **Bei Intensitäten im Bereich 10^{16} - 10^{20} W/cm² Ausbildung eines Nanoplasmas**
- **Vergleich der TDDFT-Ergebnisse mit Vorhersagen plasmaphysikalischer Ansätze. Kooperation mit TP C2 (UP4)**

Methodik / Arbeitsprogramm

Quantenmechanische Beschreibung der Elektronen mit zeitabhängiger Dichtefunktionaltheorie [Runge, Gross, PRL 52, 997 (1984)]

$$i\frac{\partial}{\partial t}\varphi_j(r,t) = H_{KS}\varphi_j(r,t)$$

$$H_{KS} = -\frac{\nabla^2}{2m} + xE(t) - \sum_\alpha \frac{Z_\alpha}{|r - R_\alpha(t)|} + \int \frac{\rho(r',t)}{|r-r'|} d^3r' + v_{xc}[\rho](r,t)$$

gekoppelt mit klassischer Dynamik für die Kerne

$$M_\alpha \frac{d^2 R_\alpha}{dt^2} = Z_\alpha E(t) + \sum_{\beta} Z_\alpha Z_\beta \frac{(R_\alpha - R_\beta)}{|R_\alpha - R_\beta|^3} - \sum_j \langle \varphi_j | \nabla_\alpha H_{KS} | \varphi_j \rangle$$

Numerische Lösung dieser Gleichungen durch Propagation der Valenzelektronen

- *auf Gitter im Ortsraum*
- *mit unitärem Algorithmus für die Zeitpropagation (Split-Operator oder Crank-Nicholson)*

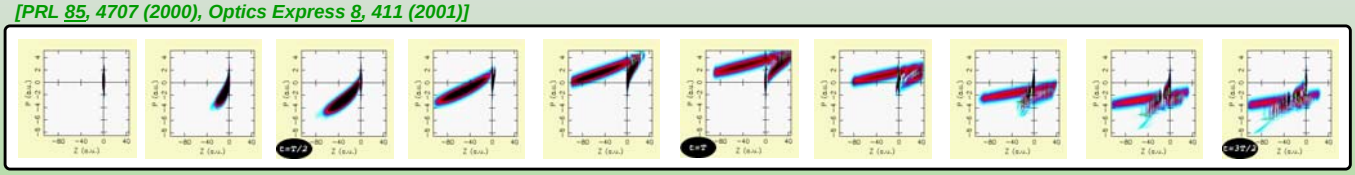
Beschreibung der Rumpfelektronen durch

- *nichtlokale Pseudopotenziale vom Troullier-Martins-Typ*

- *Parallelisierung von Teilen des OCTOPUS-Programm-Pakets.*
- *Implementierung des zeitabhängigen SIC-LDA-Funktionals, dessen Selbstwechselwirkungsfreiheit die korrekte Asymptotik des xc-Potentials (und damit die Beschreibbarkeit von Rydberg-Zuständen) garantiert.*
- *Lösung der resultierenden OEP-Integralgleichung mit Hilfe der zeitabhängigen Version des Tricks von Krieger, Li und Iafrate.*
- *Kombination der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie mit den Optimal-Control-Algorithmus von Rabitz et al. [JCP 108, 1953 (1998)]*

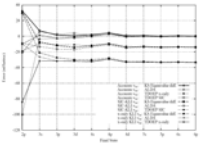
Eigene Vorarbeiten

Nichtsequentielle Doppelionisation von He: ***Wignerverteilung des Schwerpunkts der beiden Elektronen als Funktion der Zeit.***
[PRL 85, 4707 (2000), Optics Express 8, 411 (2001)]

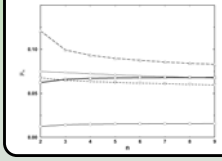


TDDFT-Berechnung von Rydberg-Zuständen

LDA liefert keine Rydberg-Zustände! Orbitalfunktionale sind erforderlich! [PRL 74, 872 (1995), IJQC 80, 534 (2000)]

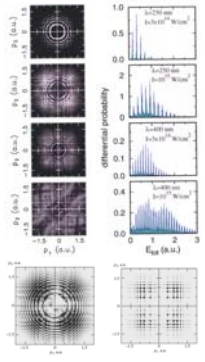


Singulett-Anregungsenergien von Be

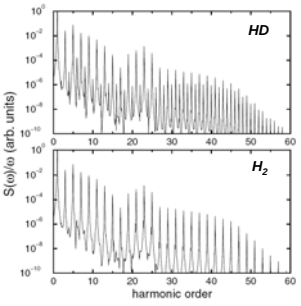


Quantendefekte der He ³P-Serie

Above-Threshold-Doppelionisation von He. [PRA 64, 023406 (2001), Laser Phys. 12, 487 (2002)]



Erzeugung gerader Harmonischer in HD als Folge nichtadiabatischer Kopplungen. [PRL 87, 103901 (2001)]



Harmonisches Spektrum von HD und H_2 erzeugt durch einen 10^{14}W/cm² Laserpuls mit 770nm Wellenlänge.