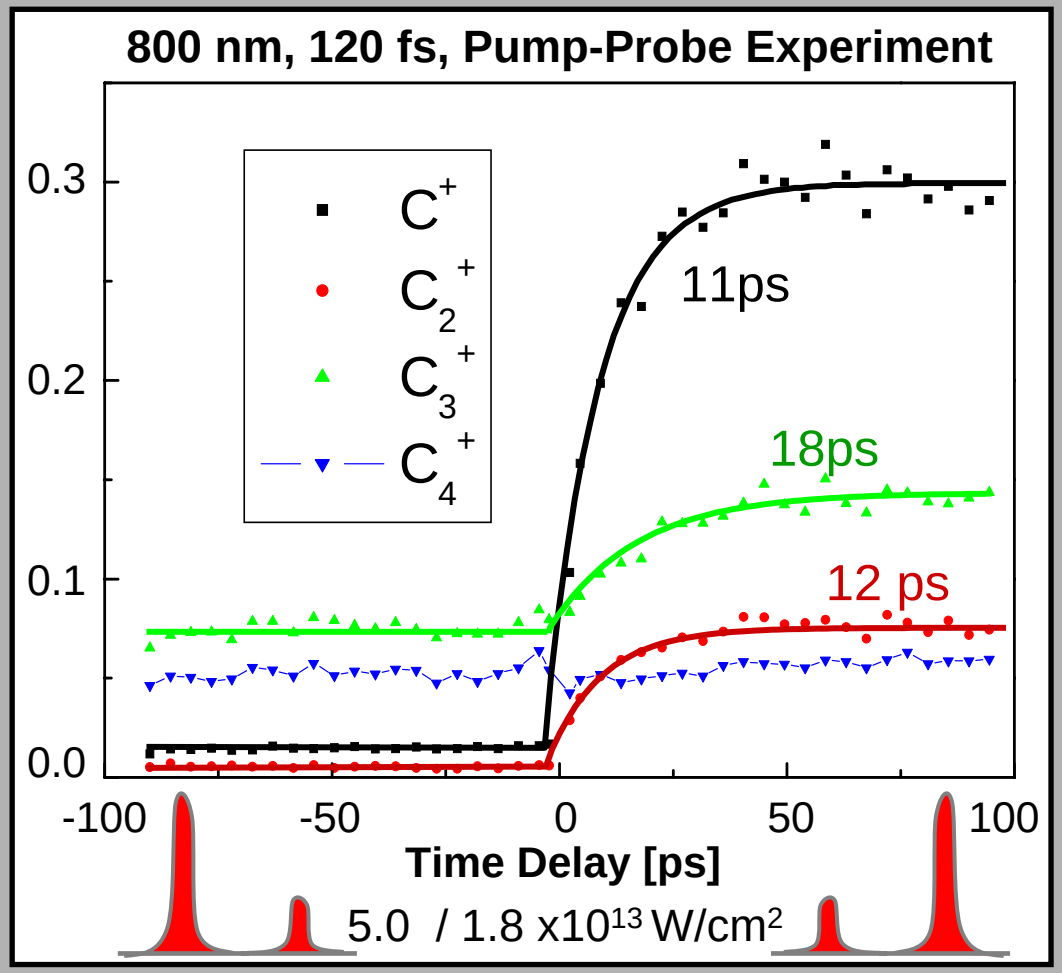
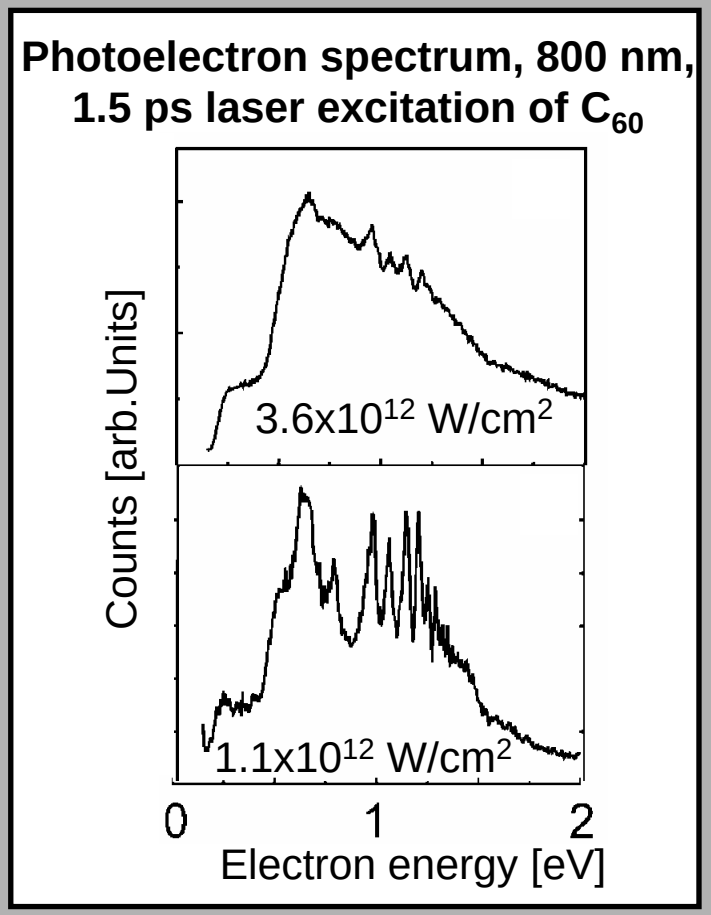
UP1: Analyse und Kontrolle photoinduzierter Anregungs- und Fragmentationsprozesse in C_{60}. Kooperation mit TP A2, C2, A6





Ziele

- *Aufklärung des Mechanismus der nichtresonanten Anregung von Rydbergzuständen in C_{60}*
- *Quantitatives Verständnis der MPI-Sättigungsintensitäten*
- *Untersuchung der nichtstatistischen Fragmentation in C^+, C_2^+, C_3^+ auf ps-Zeitskala*
- *Bestimmung optimaler Pulsformen zur selektiven Anregung der Kanäle Vielfachionisation/Fragmentation*

Methode

Zeitabhängige Dichtefunktionaltheorie für die Elektronen
(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

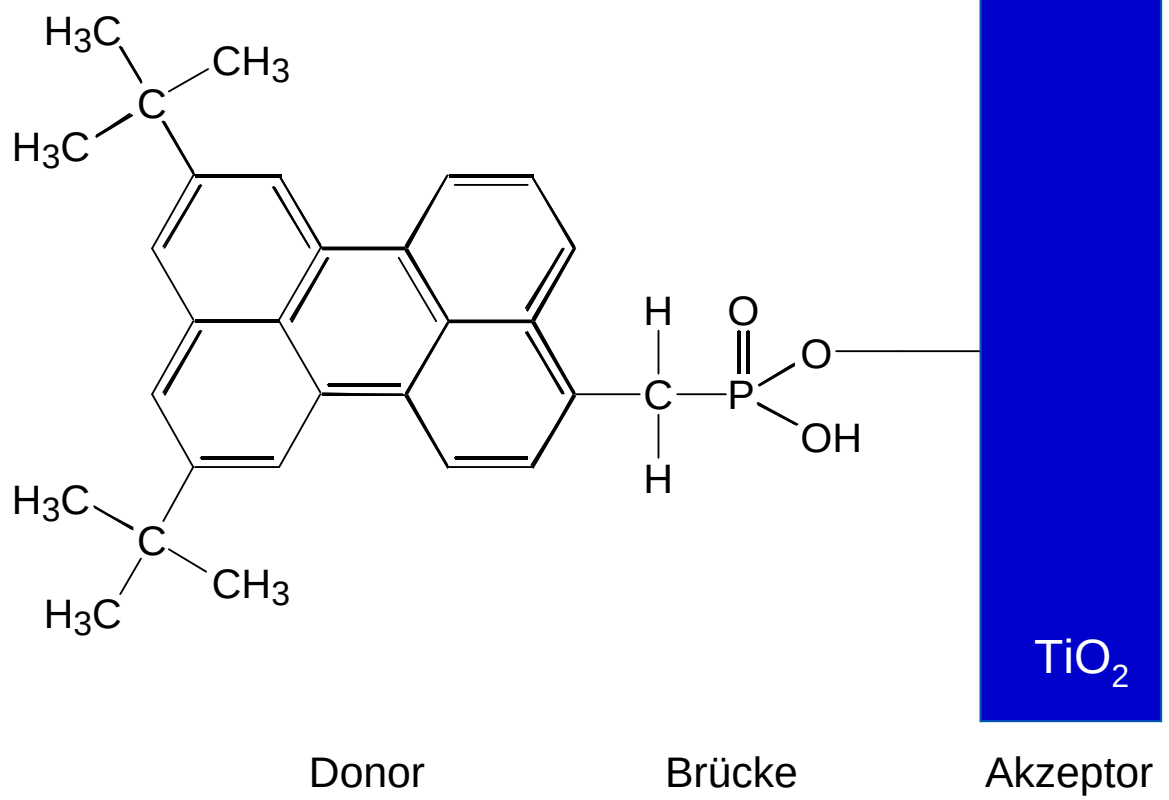
$$M_\alpha \frac{d^2 R_\alpha}{dt^2} = Z_\alpha E(t) + \sum_\beta Z_\alpha Z_\beta \frac{(R_\alpha - R_\beta)}{|R_\alpha - R_\beta|^3} - \sum_j \langle \varphi_j | \nabla_\alpha H_{KS} | \varphi_j \rangle$$

Kombination der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie mit der Theorie der optimalen Kontrolle

Intensitätsbereich hier: 10^{11} – 10^{14} W/cm^2
Intensitätsbereich in TP C2: 10^{15} – 10^{18} W/cm^2

UP2: Analyse und Kontrolle des photoinduzierten Elektronentransfers. Kooperation mit TP B5, C1, C3

Perylen an der Oberfläche von TiO_2



Ziele

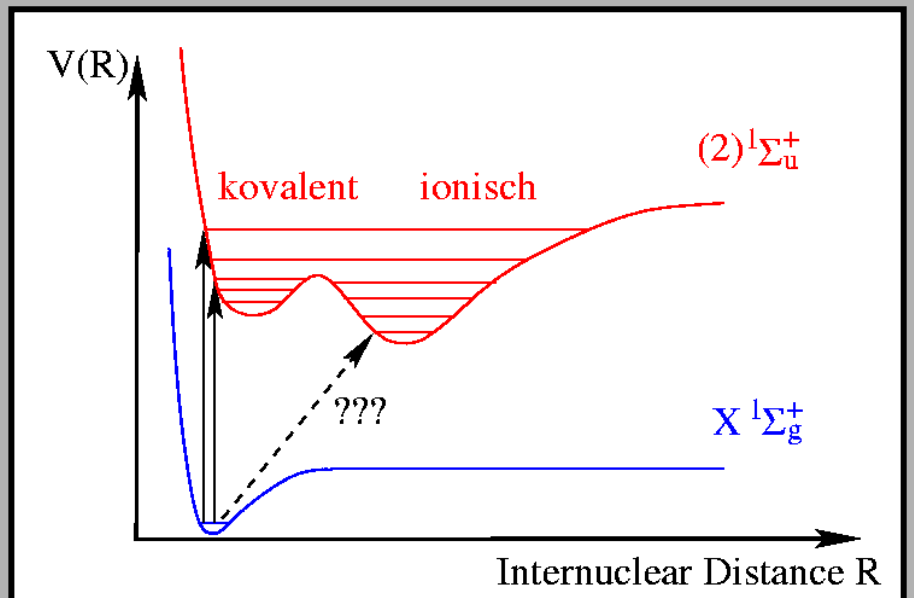
- *Untersuchung des Ladungstransfer-Mechanismus*
  - *Hüpfen von Bindung zu Bindung*
  - *Superaustausch*
  - *polaronisch / solitonisch*
- *Berechnung der Transfer-Zeit in Abhängigkeit von der Länge und Struktur der Brücke*
- *Selektive Anregung konkurrierender Elektron-Transfer-Pfade mit optimierten Pulsformen*

Methoden-Entwicklung

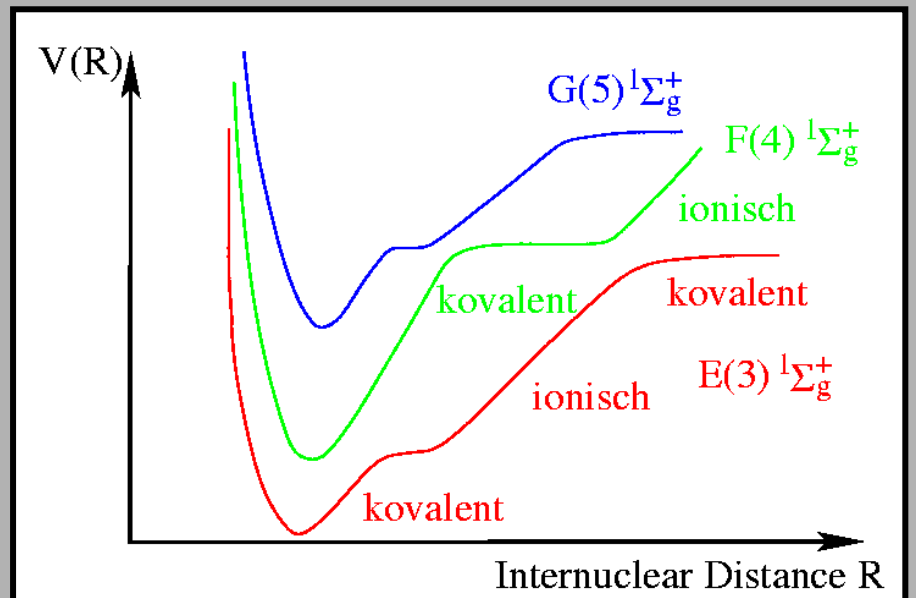
Zeitabhängige Multikomponenten-Dichtefunktionaltheorie für Elektronen und Kerne

- *Konstruktion universeller Funktionale für die Elektron-Kern-Korrelation*
- *Kalibrierung dieser Funktionale mit exakten Lösungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung für kleine Systeme (Kooperation mit TP C1)*
- *Test der Methode an einfachen Systemen (Polymerketten)*
- *Vergleich mit MCTDH-Resultaten für größere Systeme (Kooperation mit TP C3)*

UP3: Kohärente Steuerung in Alkali-Dimeren.
Kooperation mit TP A1, C2, C3



Na–Dimer: Doppelmuldenpotential

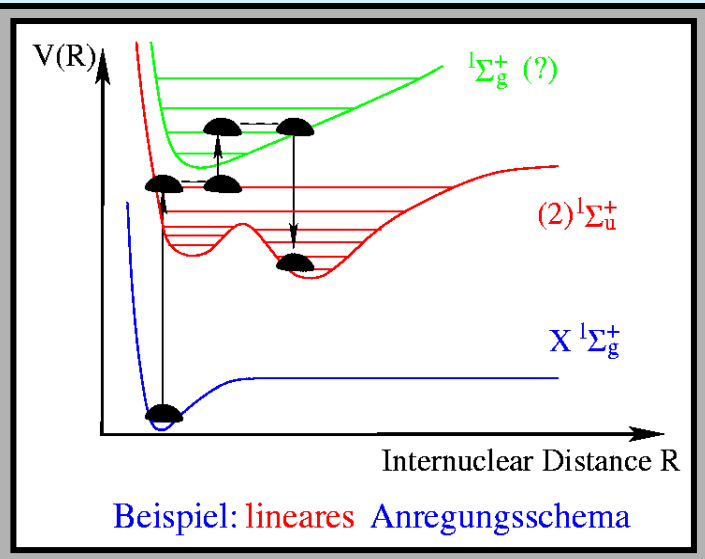


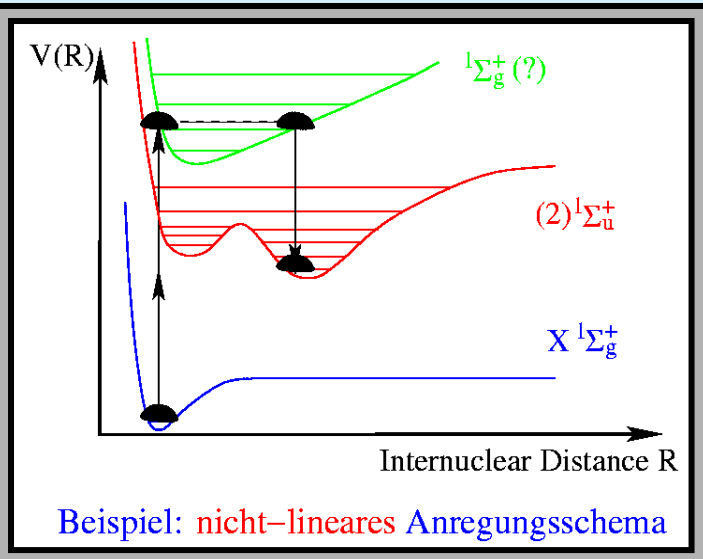
Na–Dimer: "shelf"–Zustaende

Methode: *B-Spline-Basis für Elektronen- (CI) und Kernbewegung. Kontinuumsdiskretisierung erlaubt konsistente Beschreibung von Dissoziation und Ionization, inkl. autoionisierender und prädissoziativer Resonanzen.*

Kontrolle mittels geformter Pulse in verschiedenen Intentitätsbereichen

- *Niedrige Intensität: lineare Anregungsprozesse*
- *Höhere Intensittät: nicht-lineare, aber störungstheoretisch behandelbare Multiphotonübergänge.*



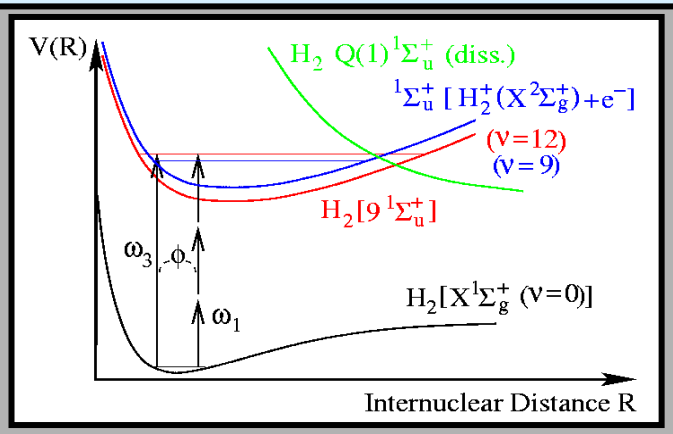


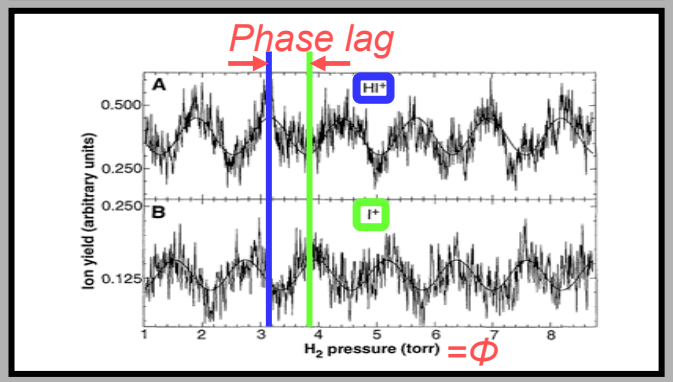
Noch höhere Intensitäten: *nicht-lineare Multiphotonenprozesse mit Potenzialverformungen, d.h. feldinduzierte vermiedene Kreuzungen, Tunnelprozesse.*

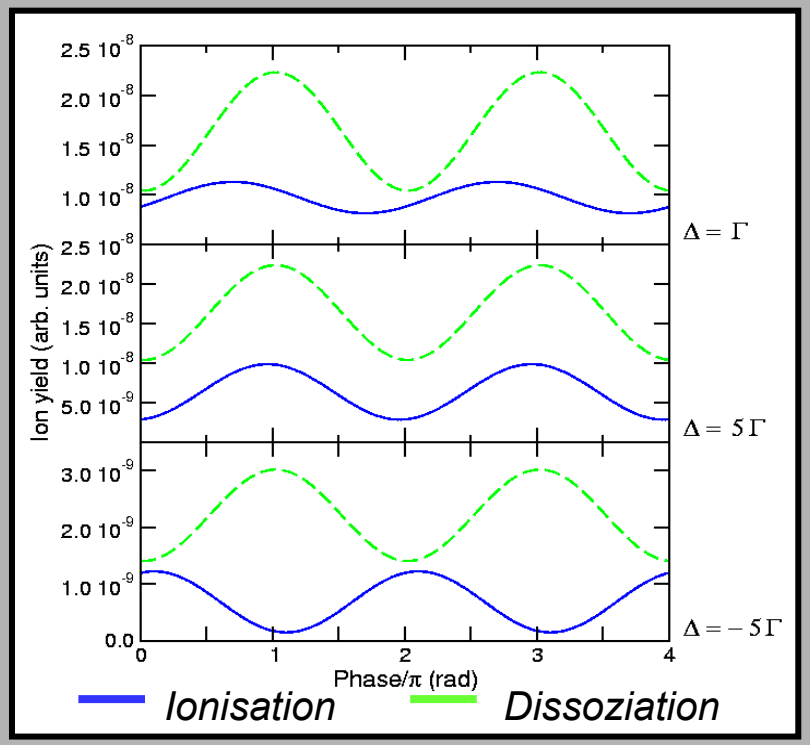
Alternative: *Kontrolle mittels geformter Pulse und (quasi)statische elektrischer Felder*

Phasenkohäherente Steuerung

Kontrolle von Dissoziation vs. Ionisation mittels Variation der Phase zwischen 1- und 3-Photonenanregungspfad.







H_2 (Theorie): PRL 86, 5454 (2001) HI (Experiment): Science 270, 77 (1995)

Kann ein entsprechendes Schema für Alkalidimere gefunden werden?
Wenn ja: Motivation für Experiment!