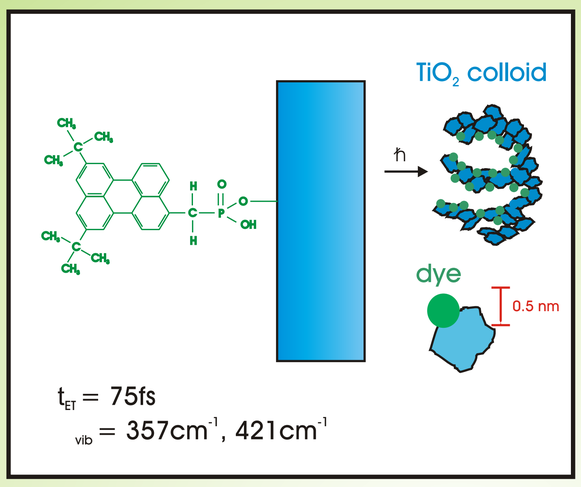
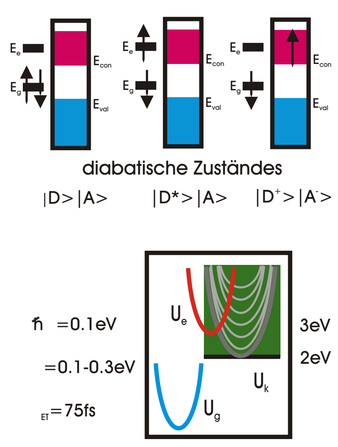
Ultraschneller heterogener Elektronentransfer (Zusammenarbeit mit dem TP B5)



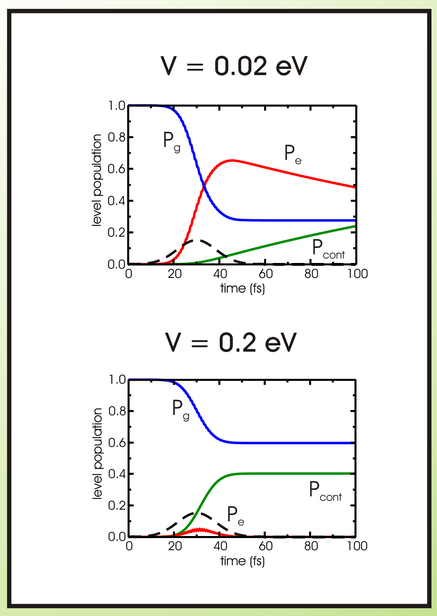
Perylen auf TiO_2

Minimalmodell

Energie-Niveau-Schema und PES



Ladungsinjektion (Abh. von $V_{ion\ e}$)



zeitabhängige Schrödinger-Gleichung

Hamilton–Operator für den heterogenen Elektronentransfer aus einem Farbstoffmolekül adsorbiert an einer Halbleiteroberfläche

$$H = H_{\text{mol-sem}} + H_{\text{field}}(t)$$
$$\equiv \sum_{a=g,e,\mathbf{k}} H_a(q)|\varphi_a\rangle\langle\varphi_a| + \sum_{\mathbf{k}} (V_{\mathbf{k}e}|\varphi_{\mathbf{k}}\rangle\langle\varphi_e| + \text{h.c.}) - \mathbf{E}(t)(\mathbf{d}_{eg}|\varphi_e\rangle\langle\varphi_g| + \text{h.c.})$$

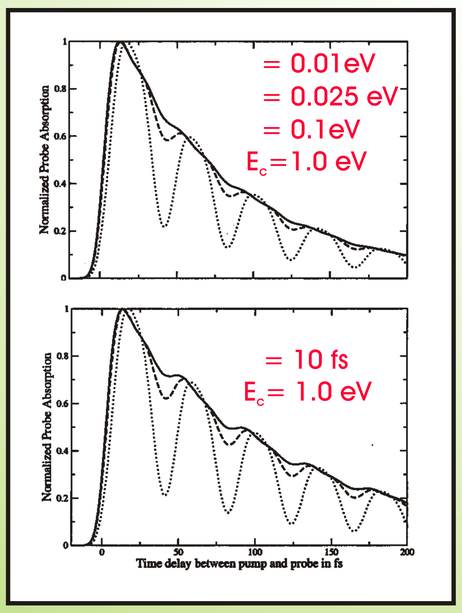
Entwicklung nach den Elektron–Schwingungs–Zuständen $\chi_{aM}\varphi_a$

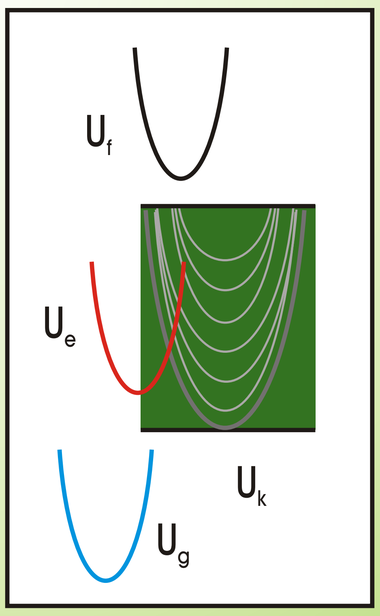
$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{aM} C_{aM}(t)|\chi_{aM}\rangle|\varphi_a\rangle$$

Entwicklungskoeffizienten für das Leitungsband–Kontinuum $C_{\mathbf{k}M}(t) \equiv C_M(\omega;t)$ werden durch ein orthonormiertes Funktionensystem $u_r(\omega)$ dargestellt

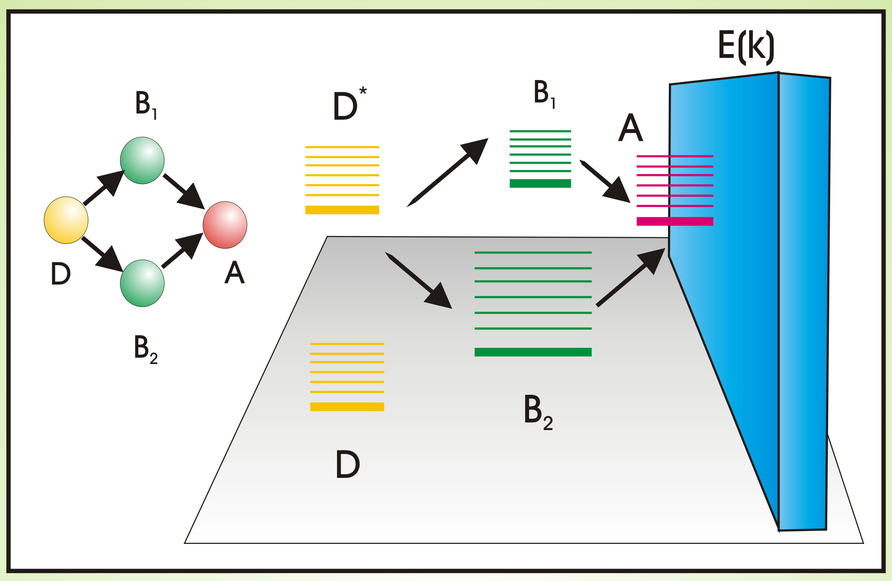
$$C_M(\omega;t) = \sum_r u_r(\omega) C_M^{(r)}(t)$$

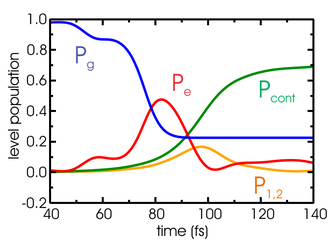
Pump-Probe-Spektren



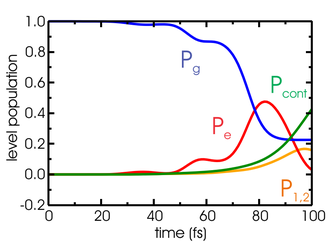


Ladungsinjektion über Brückenmoleküle



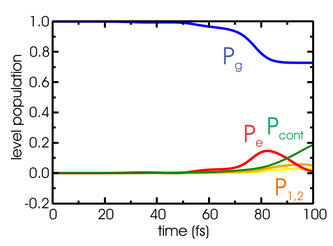


$V_{e,1}=V_{1,cont}=V_{e,2}=V_{2,cont}=0.05$ eV

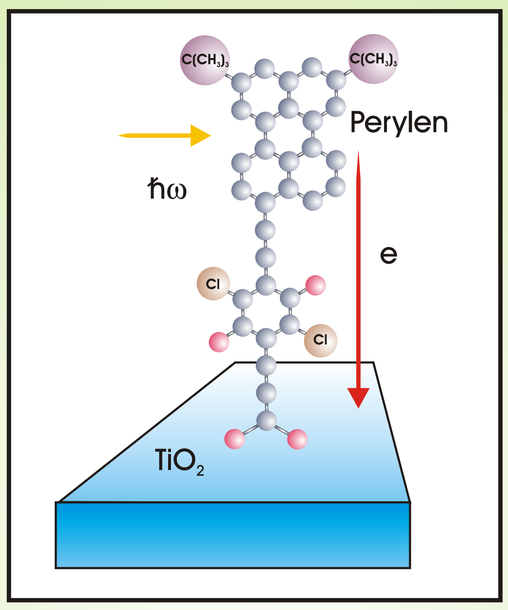


Laserpuls-Kontrolle des Brückenmolekül-vermittelten ET

$V_{e,1}=V_{1,cont}=0.05$ eV
$V_{e,2}=V_{2,cont}=0.07$ eV



Zukünftige Vorhaben



Ableitung eines Elektron–Schwingungs–Hamiltonoperator mit vibronischen Kopplungen aus quantenchemischen Rechnungen (elektronische Zustände φ_a beinhalten die des neutralen Perylens, der Brückenmoleküle und des Perylen–Kations mit einem Elektron im Leitungsband des Halbleiters)

$$H = \sum_{a,b} [\delta_{a,b} \frac{1}{2} \sum_j \omega_j (\frac{\partial^2}{\partial q_j^2} + q_j^2) + \sum_{j,\bar{j}} \lambda_{ab,j\bar{j}} q_j q_{\bar{j}}] |\varphi_a\rangle\langle\varphi_b|$$

Anwendung der MCTDH–Methode für gekoppelte elektronische Zustände und bei Anwesenheit von Strahlungsfeldern der Laserpulse

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_a \chi_a(q_1,...,q_f;t)\ |\varphi_a\rangle = \sum_a \sum_{j_1=1}^{n_1} ... \sum_{j_f=1}^{n_f} A^{(a)}_{j_1,...,j_f}(t) \prod_{\kappa=1}^{f} \phi^{(a\kappa)}_{j_\kappa}(q_\kappa,t)\ |\varphi_a\rangle$$

Benutzung der Methode der Optimalen Kontrolle zur Steuerung der Ladungsinjektions–Zeit

$$J(t_f;\mathbf{E}) = |\ \langle\Psi_{\text{tar}}|\Psi(t_f)\rangle\ |^2 - \frac{1}{2}\int_{t_0}^{t_f} dt\ \lambda(t)\mathbf{E}^2(t)$$