

Zusammenfassung der Dissertation mit dem Titel:

Entwicklung approximativer Methoden in der zeitabhängigen Dichtefunktional-Theorie

vorgelegt von

Thomas Niehaus

In dieser Arbeit werden zwei Näherungsansätze zur theoretischen Beschreibung der Wechselwirkung von Vielteilchensystemen mit elektromagnetischer Strahlung entwickelt. Beide Verfahren basieren auf der zeitabhängigen Verallgemeinerung der Dichtefunktional-Theorie, die zur Ermittlung von Grundzustandseigenschaften quantenmechanischer Systeme inzwischen weite Verbreitung gefunden hat.

Für niedrige Intensitäten der äußeren Felder wird die sogenannte γ -Approximation im Rahmen der *linear response*-Theorie hergeleitet. Mit dieser parameterfreien Methode können Anregungsenergien und Absorptionsspektren großer Moleküle oder Cluster berechnet werden. Testrechnungen an einer Reihe von organischen Verbindungen zeigen eine gute Übereinstimmung der Resultate mit weit rechenintensiveren *first principles*-Verfahren und dem Experiment. Weiterhin wird anhand des optischen Spektrums von C_{60} der Einfluß kollektiver Effekte und deren Berücksichtigung innerhalb der γ -Approximation genauer untersucht.

Zur Beschreibung der Wechselwirkung von Materie mit ultrakurzen intensiven Laserpulsen wird im zweiten Teil der Arbeit das sogenannte TD-DFTB-Verfahren entwickelt. Diese nicht-perturbative Schema dient zur realistischen Simulation der Molekulardynamik auf gekoppelten Potentialflächen. Im Mittelpunkt der Anwendungen steht die selektive Anregung kohärenter Schwingungen durch Femtosekundenpulse. Die in neueren Pump-Probe-Experimenten gefundenen speziellen Auswahlregeln können dabei durch die theoretischen Berechnungen am Beispiel von C_{60} bestätigt werden. Darüberhinaus geben die Simulationen Aufschluß über die Abhängigkeit konkurrierender Anregungsmechanismen von Parametern wie Pulsdauer und Intensität und ermöglichen damit Vorhersagen für künftige Messungen.