Filipp Furche (Autor)
Dichtefunktionalmethoden für elektronisch angeregte Moleküle : Theorie - Implementierung - Anwendung

Filipp Furche

Dichtefunktionalmethoden für elektronisch angeregte Moleküle

Theorie - Implementierung - Anwendung

Cuvillier Verlag Göttingen

https://cuvillier.de/de/shop/publications/3898

Copyright:
Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentzsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen, Germany
Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: https://cuvillier.de

Inhalt

Einleitung und Übersicht **1**

1 Dichtefunktionaltheorie für elektronisch angeregte Zustände **5**
1.1 Einleitung 5
1.2 Dichtematrix-Formulierung der TDKS-Responsetheorie 7
1.2.1 Bewegungsgleichungen für die TDKS-Einteilchendichtematrix 7
1.2.2 TDKS-Responsetheorie 8
1.3 Lineare Antwort 9
1.3.1 Das TDKS-Responseproblem 9
1.3.2 Variationsprinzip für Responseeigenschaften 10
1.4 Anregungsenergien 11
1.4.1 Das TDKS-Eigenwertproblem 11
1.4.2 Variationsprinzip für Anregungsenergien 13
1.5 Eigenschaften angeregter Zustände 13

2 Numerische Lösung der TDKS-Response- und Eigenwertprobleme **17**
2.1 Einleitung 17
2.2 Diskretisierung in endlichen Basissätzen 18
2.3 Algorithmen zur Lösung der TDKS-Response- und Eigenwertprobleme 19
2.3.1 Allgemeine Eigenschaften iterativer Verfahren 19
2.3.2 Der modifizierte OJJ-Algorithmus 19
2.4 Das ESCF-Programm 23
2.4.1 Übersicht 23
2.4.2 Zur Berechnung der Matrix-Vektor-Produkte 24
2.5 Testrechnungen 26
2.5.1 Stabilität 26
2.5.2 Symmetrieausnützung 28
2.5.3 Skalenverhalten in Abhängigkeit von der Zahl an Lösungsvektoren 29
2.5.4 Skalenverhalten in Abhängigkeit von der Systemgröße . . . 30

2.5.5 Rechenzeiten für repräsentative Anwendungen 31

3 Analytische Berechnung der Eigenschaften angeregter Zustände 33
3.1 Einleitung 33
3.2 Analytische erste Ableitungen der TDDFT-Anregungsenergie . . . 34
3.2.1 Auswertung der Anregungsenergie in der Atomorbital-Basis 34
3.2.2 Ableitungen der Grundzustandsdichtematrix 36
3.2.3 Eigenschaften erster Ordnung 36
3.2.4 S^2-Erwartungswerte für angeregte Zustände 39
3.3 Zur Berechnung der Antwort des Austauschkorrelationspotentials 40
3.4 Die TURBOMOLE-Implementation EGRAD 41

4 Berechnete Eigenschaften angeregter Zustände im Vergleich mit genauen Experimenten 43
4.1 Einleitung 43
4.2 Methoden 44
4.3 Diskussion der Resultate 45
4.3.1 Auswahl des Testsatzes 45
4.3.2 Adiabatische Anregungsenergien 45
4.3.3 Strukturen und Schwingungsfrequenzen 47
4.3.4 Fazit 48

5 Circulardichroismus von Fullerenen 49
5.1 Einleitung 49
5.2 Methoden 50
5.3 Ergebnisse 51
5.3.1 Fulleren C_{76} 51
5.3.2 Fulleren D_3-C_{78} 52
5.3.3 Fulleren D_2-C_{80} 53
5.3.4 Fulleren D_2-C_{84} 55

Ausblick 57

A Näherungen für das Austauschkorrelationsfunktional 59

B Basissätze 61

C Berechnete Eigenschaften angeregter Zustände im Vergleich zum Experiment 63

D Zuordnung der CD-Spektren von Fullerenen 71

Abkürzungen 75

Literatur **77**

Lebenslauf **83**