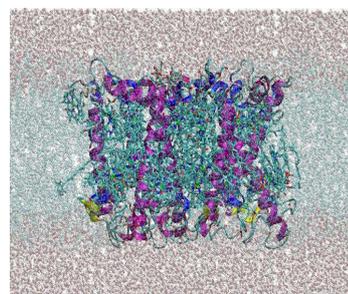
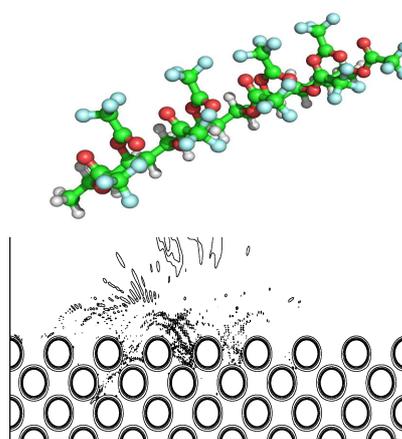
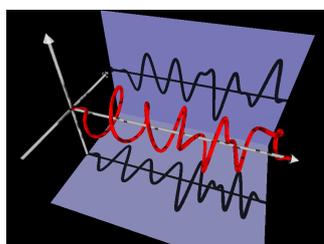
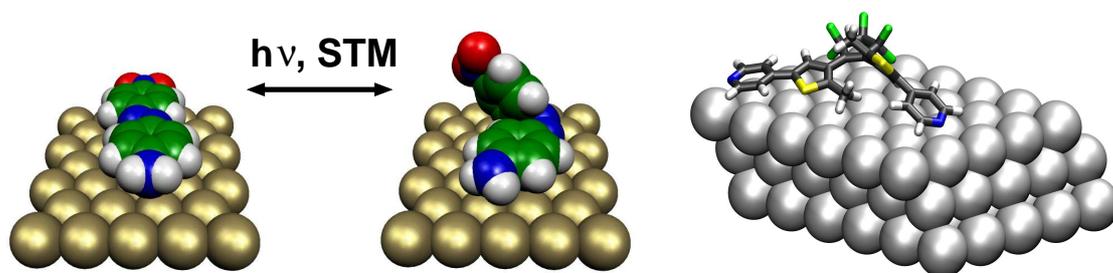


Info Theoretische Chemie

– April 2012 –

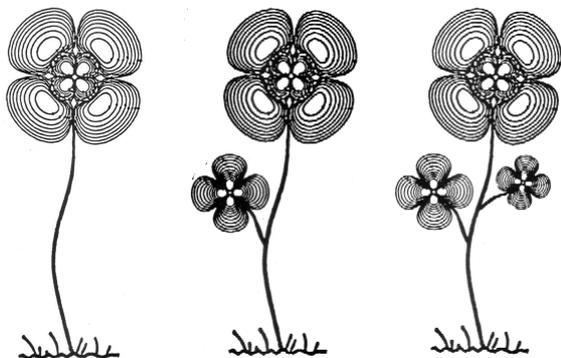


Inhaltsverzeichnis

1 Editorial	3
2 Ein Beitrag zum Jubiläumsheft „20 Jahre Info Theoretische Chemie“	4
3 Arbeitsgruppen stellen sich vor	6
3.1 Theoretische Chemie an der Carl von Ossietzky Universität Oldenburg	6
3.2 „Theoretische Chemie 3“ an der Technischen Universität München	11
4 Nachrufe	15
4.1 Prof. W.A. Bingel, Göttingen	15
4.2 Prof. Peter Otto, Erlangen	16
5 Tagungskalender	17
6 DFG-Mitteilungen	19
7 Klatsch und Tratsch	19

1 Editorial

Mit der aktuellen Ausgabe der INFO THEORETISCHE CHEMIE übernimmt die Arbeitsgruppe für Theoretische Chemie an der Universität Potsdam den Stab für die nächsten Ausgaben von den Bonner Arbeitsgruppen um Frank Neese und Thomas Bredow. Die Bonner haben in der Geschichte des Hausblatts der Theoretischen und Computerchemie im deutschsprachigen Raum jeher eine tragende Rolle gespielt – allem voran dadurch, dass dieses Forum von Frau Prof. Peyerimhoff vor nunmehr 20 Jahren aus der Taufe gehoben wurde. Im Editorial der ersten Ausgabe der INFO vom 15. Januar 1992, auf dem Titel mit einer noch recht spärlichen Orbitalblüte geschmückt (der sich in späteren Ausgaben rasch weitere Triebe zugesellten, siehe Abbildung), formuliert die



Die Coverbilder der ersten drei Ausgaben der Info vom 15.1., 15.4. und 24.7.1992.

Gründungsmutter den Zweck des Unternehmens, nämlich u.a. „... einen besseren Informationsfluss unter den Theoretikern zu erreichen“. Seither ist die INFO mehr als 40 Mal erschienen, gemäß der Peyerimhoffschen Vision von 1992 längst „per e-mail“ verschickt und nicht mehr, wie die ersten Exemplare, mit der Schneckenpost, für deren Beschleunigung eine „Briefmarkenspende von DM 3,-“ gern entgegen genommen wurde.

Mit dieser Jubiläumsausgabe bemühen sich die Potsdamer, die Informationen für unsere Gemeinschaft weiter im Fluss zu halten. Neben der Fortführung alter und neuerer Traditionssparten wie „Arbeitsgruppen stel-

len sich vor“, „Tagungsvorschau“, dem allseits beliebten „Klatsch und Tratsch“ sowie „Die DFG informiert“, dient sie auch, Rückschau – und inne – zu halten. So wird im Editorial zur Erstausgabe die wichtige Funktion von Professor W.A. Bingel (Göttingen) bei der Gestaltung und Organisation des „Symposiums für Theoretische Chemie“ in seiner Anfangsphase hervorgehoben. Kürzlich ging Herr Bingel von uns – Herr Kollege Botschwina erinnert mit einem Nachruf an seinen Amtsvorgänger. In der ersten Ausgabe der INFO von 1992 gab es auch die Sparte „Neue Bundesländer“, mit der Frau Peyerimhoff den Zweck verfolgte, „bei der Integration von Ost und West“ mitzuhelfen. Herr Professor Zülicke berichtete damals zur „Situation der theoretisch-chemischen Forschung der ehemaligen ostdeutschen Akademie-Institute“. Für die jetzige Auflage konnten wir ihn erneut gewinnen, um seine Sicht der Nachwendezeit am konkreten Beispiel des Aufbaus der Theoretischen Chemie an der Universität Potsdam zu schildern. Urteilen Sie selbst, ob die Integration funktioniert hat. In der großen Politik jedenfalls, in der ostdeutsche Persönlichkeiten, z.T. der Theoretischen Chemie durchaus verbunden, ganz vorne mitspielen, scheint sie gelungen.

Was mir bleibt ist Ihnen/Euch zu wünschen, Kurzweil, Nützlich und Nachdenkenswertes beim Durchblättern der folgenden Seiten zu finden. Und wie immer nehmen die derzeitigen Herausgeber, der „Redakteur vom Dienst“ Dr. Gernot Füchsel und ich selbst, gerne Beiträge und Neuigkeiten aus allen Arbeitsgruppen in Ost und West wie auch aus der Schweiz und Österreich für die nächste Ausgabe im November entgegen – bis zum 31. Oktober 2012.

Mit den besten Wünschen verbleibe ich, Ihr/Euer

Peter Saalfrank

Potsdam, im April 2012

Verantwortlich: Peter Saalfrank
 Institut für Chemie der Universität Potsdam
 Karl-Liebknecht-Straße 24-25
 D-14476 Potsdam-Golm
 Redaktion: Gernot Füchsel

2 Ein Beitrag zum Jubiläumsheft „20 Jahre Info Theoretische Chemie“

Theoretische Chemie an der Universität Potsdam – der Beginn 1993 und das erste Jahrzehnt

Im Januar 1992 erschien, initiiert von Frau Kollegin Peyerimhoff (Univ. Bonn), die erste Ausgabe der INFO THEORETISCHE CHEMIE; ein halbes Jahr zuvor, am 15. Juli 1991, war die Universität Potsdam gegründet worden, und mit dem neu eingerichteten und 1993 erstmals besetzten Lehrstuhl für Theoretische Chemie entstand endlich eine Keimzelle unseres Gebietes auch im Land Brandenburg. Nun, zwei Jahrzehnte später, wurde uns angetragen, die Jubiläumsausgabe der INFO zu gestalten; das trifft sich gut.

Die Theoretische Chemie in Potsdam ist eng mit den politischen Umwälzungen in Deutschland 1989/90 und deren Auswirkungen auf die deutsche Wissenschaftslandschaft verknüpft. Die erste INFO-Ausgabe brachte unter der Rubrik „Neue Bundesländer“ einen Situationsbericht über die theoretisch-chemischen Arbeitsgruppen an den ostdeutschen Universitäten sowie über die nach der Evaluierung der Institute der ehemaligen Akademie der Wissenschaften durch den Wissenschaftsrat dort verbliebene theoretisch-chemische Forschungskapazität. Die Akademie-Institute wurden zum Jahresende 1991, wie im Einigungsvertrag festgelegt, geschlossen und die positiv evaluierten, größtenteils zur Eingliederung in Hochschulen empfohlenen Arbeitsgruppen im Rahmen eines eigens dafür geschaffenen „Wissenschaftler-Integrationsprogramms“ (WIP) vorläufig weitergeführt, d. h. finanziert. Integration, in welchem Kontext auch immer, ist ein schwieriges Problem, wie heute jeder weiß; damals war man in den betroffenen Arbeitsgruppen zunächst voller Optimismus. Die Realisierung der Integrationsempfehlung blieb allerdings den Gruppen selbst überlassen. Es stellte sich bald heraus, dass dieses Konzept allenfalls punktuell funktionieren konnte, da die Hochschulen ihrerseits Personal (besonders im akademischen Mittelbau) reduzieren mussten, um sich den in der Bundesrepublik üblichen Standards anzupassen; so war natürlich der Zugang weitgehend versperrt. Die Akademie-Wissenschaftler hatten sich einzureihen in den Kreis der Bewerber um die hier und dort ausgeschriebenen Stellen; so auch der Berichterstatter, der sich 1992 an der Universität Potsdam um den Lehrstuhl für Theo-

retische Chemie bewarb und 1993 berufen wurde.

Im Land Brandenburg bestand eine besondere Situation. Seit 1811, als die Universität in Frankfurt/Oder („Viadrina“) nach über 300jährigem Bestehen geschlossen wurde, gab es im Land keine Universität. Dieser Zustand änderte sich erst nach dem 2. Weltkrieg, als 1948 in Potsdam eine Brandenburgische Landeshochschule gegründet, mit großem Enthusiasmus aufgebaut, allerdings bereits 1951 auf höchsten Parteibeschluss hin in eine Pädagogische Hochschule umgewandelt wurde. Unmittelbar nach der politischen Wende 1989/90 erfolgte eine „Umgründung“ zurück zur Brandenburgischen Landeshochschule und schließlich Mitte 1991 daraus die Gründung der heutigen Universität Potsdam, in deren Struktur im Rahmen eines relativ kleinen Fachbereiches Chemie (10 Professuren) nunmehr auch die in der Landeshochschule noch nicht vertretene Theoretische Chemie mit einer C4-Professur vorgesehen war. Mit der Besetzung dieses Lehrstuhls 1993 beginnt also die Geschichte der Theoretischen Chemie an der Universität Potsdam.

Der Neuaufbau eines Faches an einer Universität ist eine reizvolle, wenn auch nicht ganz einfache Aufgabe. Man hat unter den Bedingungen einer grundsätzlich keiner staatlichen Bevormundung unterworfenen Hochschulautonomie weitgehend freie Gestaltungsmöglichkeiten, allerdings gibt es stets auch Einschränkungen. Was die Potsdamer Theoretische Chemie betrifft, so konnte in der Forschung inhaltlich an die Arbeit in der Akademie-Gruppe (Abteilung Theoretische Chemie des Zentralinstituts für Physikalische Chemie) angeschlossen werden, jedoch mit stark verringerter Personalkapazität. Auf Grund der Raumknappheit an der Universität musste lange eine Aufteilung der Gruppe auf zwei Standorte (Am Neuen Palais in Potsdam sowie Berlin-Adlershof, später Park Babelsberg) in Kauf genommen werden. Ferner erfolgte nur nach und nach die Freigabe der für den Lehrstuhl zugesagten Mitarbeiterstellen, die bis dahin noch eine Zeitlang durch WIP-Mittel finanziert wurden; dann konnten endlich Christian Zuhrt und Reinhard Vetter feste Stellen besetzen. Mitte des Jahres 2000 bezog

die Gruppe gemeinsam ihre Räume im neuen Gebäude (Haus 25) auf dem Campus Potsdam-Golm. Positiv zu vermerken ist die damals verhältnismäßig großzügige Sachmittelausstattung durch die Universität; hinzu kamen Drittmittel (DFG-Projekte; ein EU-Projekt; Fonds der Chemischen Industrie).

Die Forschungsschwerpunkte, überwiegend mitgebracht aus der voruniversitären Tätigkeit und betrieben in Kooperation mit auswärtigen Arbeitsgruppen (Univ. Bonn; Hahn-Meitner-Inst. Berlin; Univ. Paris-Sud/Orsay; Univ. Rom; Indian Inst. of Technology/Kanpur), waren:

- Molekulare Wechselwirkungen und Elementarprozesse
- Intramolekulare Dynamik, Spektren und Photodissoziation kleiner Moleküle
- Struktur und Dynamik von Clustern.

Ein Anliegen dieser ersten Phase war es natürlich auch, die wissenschaftlichen Beziehungen zu lokalen Partnern im Potsdamer Raum anzubahnen.

Um unverzüglich in die Chemie-Ausbildung an der Universität Potsdam einsteigen zu können, musste sehr schnell ein Kurs Theoretische Chemie ausgearbeitet werden, der zum Pflichtprogramm gehören und sich über drei Semester (5.-7. Sem.) erstrecken sollte:

1. Quantenchemie I (2 SWS Vorlesung plus 2 SWS Übungen)
2. Computerchemie (2 SWS Vorlesung, dazu ein Praktikum)
3. Reaktionsdynamik (2 SWS Vorlesung).

Hinzu kamen das Theoretisch-chemische Seminar mit Beiträgen aus der Arbeitsgruppe und von Gästen (fakultativ) sowie wechselnde vertiefende und weiterführende Spezialvorlesungen (Quantenchemie II; Symmetrien in Quantenchemie und Molekülphysik; Theoretische Grundlagen der Molekülspektroskopie I und II; alles ebenfalls fakultativ). Ab SS 1999 wurde dann noch die Mathematik- und die Informatikausbildung für Diplomchemiker und einige chemienahe Nebenfächer übernommen (Mathematik I-III im 1.-3. Semester, jeweils Vorlesung und Übungen; Informatik I und II, jeweils Einführung mit Übungen im Computerpool).

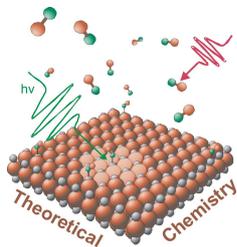
Diese Entwicklung vollzog sich alles in allem recht glatt; es herrschte eine sehr angenehme kollegiale Atmosphäre in der Potsdamer Chemie, in welche die Neuberufenen durch die „Alteingesessenen“ (hervorzuheben unter diesen der Physikochemiker Rolf Mitzner, zugleich Gründungsrektor der Universität, und der leider unlängst verstorbene Organiker Gerhard Kempter) herzlich aufgenommen wurden. Die Rahmenbedingungen hingegen waren in den 1990er Jahren alles andere als günstig. Die naturwissenschaftlichen Fächer, besonders die Chemie, befanden sich damals überall in einer recht schwierigen Lage: das gesellschaftliche Ansehen und die Akzeptanz waren stark gesunken, und die wirtschaftliche Lage der chemischen Industrie war schwierig; die Studentenzahlen gingen zurück. Es mangelte daher an wissenschaftlichem Nachwuchs und es fiel schwer, Diplomanden zu gewinnen und Doktorandenstellen zu besetzen, auch bei ansonsten recht gut ausgestatteten Drittmittelprojekten. Diese Schwierigkeiten wirkten sich natürlich gerade in der Potsdamer Aufbauphase sehr nachteilig aus. Es war daher nicht verwunderlich, dass sogar die Frage diskutiert wurde, ob es zu vertreten sei, neben den Chemie-Fachbereichen der drei großen Berliner Universitäten das Fach auch in Potsdam einzurichten. Dem konnte nur durch eine überzeugende Konzeption, die besonders auf die Kooperation mit den chemienahen außeruniversitären Einrichtungen in Golm setzte, und natürlich durch gute wissenschaftliche Arbeit begegnet werden. Der positive Ausgang der Evaluierung der Mathematisch-naturwissenschaftlichen Fakultät durch eine Arbeitsgruppe des Wissenschaftsrates Ende 1996 beendete schließlich diese Phase der Gefährdung und Unsicherheit. Es wurde grünes Licht für den Bau des ersten naturwissenschaftlichen Institutsgebäudes auf dem neuen Universitätscampus Potsdam-Golm gegeben, in das als erstes Fach die Chemie einschließlich der Theoretischen Chemie rund dreieinhalb Jahre später umziehen konnte. Zugleich begann sich das Fach Chemie deutschlandweit zu konsolidieren, die Studentenzahlen stiegen wieder an. Inzwischen ist die Theoretische Chemie (wie auch die gesamte Chemie) an der Universität Potsdam ein wohletabliertes, prosperierendes Fach.

Im Frühjahr 2003 erfolgte die Übergabe der Amtschäfte an Herrn Kollegen Peter Saalfrank.

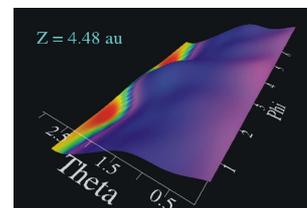
*Prof. Dr. em. Lutz Zülicke
Universität Potsdam, Theoretische Chemie 1993 - 2003*

3 Arbeitsgruppen stellen sich vor

3.1 Theoretische Chemie an der Carl von Ossietzky Universität Oldenburg



CARL
VON
OSSIEZKY
universität OLDENBURG
Prof. Dr. Thorsten Klüner



Einführung

Am Institut für Reine und Angewandte Chemie der Carl-von-Ossietzky Universität Oldenburg wurde das Fach Theoretische Chemie durch die Berufung von Thorsten Klüner im Jahr 2004 neu gegründet. In den nachfolgenden sieben



Jahren konnte dort die Theoretische Chemie als eigenständiges Fach in Forschung und Lehre im Nordwesten Deutschlands fest etabliert werden. So ist die Arbeitsgruppe „Theoretische Chemie“ an zahlreichen

lokalen, regionalen und transregionalen Forschungsinitiativen beteiligt. In diesem Kontext ist Thorsten Klüner Sprecher des interdisziplinären Schwerpunktes „Energieforschung“ am Hanse-Wissenschaftskolleg (HWK), welches von den Ländern Niedersachsen und Bremen finanziell getragen wird. In der Lehre ist die AG Theoretische Chemie neben dem eigentlichen Curriculum an der Universität Oldenburg an der Durchführung von verschiedenen Sommer- und Winterschulen aktiv beteiligt. Nachfolgend möchten wir unsere wesentlichen Aktivitäten in Forschung und Lehre kurz zusammenfassen.

Forschung

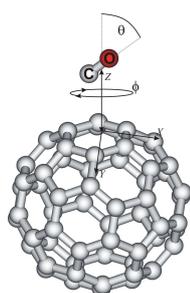
Die Expertise unserer Arbeitsgruppe umfasst die Entwicklung und Anwendung quantenchemischer und quantendynamischer Methoden für materialwissenschaftliche Fragestellungen, wobei insbesondere die Charakterisierung (photo-)chemischer Prozesse an Festkörperoberflächen zu un-

seren Forschungsschwerpunkten gehört. Unser Ziel ist es dabei, in enger Kooperation mit experimentell arbeitenden Gruppen, (photo-)chemische Elementarreaktionen an Oberflächen erstmalig in ihrer ganzen Komplexität zu verstehen und Vorhersagen für zukünftige Experimente zu ermöglichen. Von großer Bedeutung ist dabei die Berechnung von Potentialflächen in allen für die Dynamik der Photoreaktion relevanten Freiheitsgraden. Unsere Arbeitsgruppe ist dabei insbesondere auf die Berechnung elektronisch angeregter Zustände von Adsorbat-Substrat-Systemen spezialisiert. Im Laufe der letzten Jahre konnten für zahlreiche Systeme erstmals genaue Potentialflächen berechnet werden, welche die Grundlage für eine exakte Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung der Kernbewegung im Rahmen stochastischer Wellenpaketrechnungen bildeten. Von besonderer Bedeutung für ein detailliertes Verständnis der Oberflächenphotochemie war dabei die Entwicklung neuer Methoden (Surrogate Hamiltonian: SH) zur Beschreibung quantendissipativer Effekte, da diese entscheidend den nicht-adiabatischen Relaxationsmechanismus bestimmen, der die Lebensdauer elektronisch angeregter Intermediate determiniert. In jüngster Zeit wurde ferner der Ansatz des Surrogate Hamiltonian um die Theorie optimaler Kontrolle (OCT) erweitert, um durch externe elektromagnetische Felder (Laserpulse) quantendissipative Phänomene gezielt zu manipulieren. Darüber hinaus werden in enger Kooperation mit verschiedenen Arbeitsgruppen der Anorganischen, Organischen und Physikalischen Chemie des Instituts verschiedene chemische Fragestellungen mit dem ganzen Spektrum quantenchemischer Methoden behandelt. Dabei ist die Theoretische Chemie als mittlerweile unverzichtbare Teildisziplin in die jeweils aktuellsten experimentellen Fragestellungen eingebunden. Weiterhin existieren wissenschaftliche Kooperationen mit externen Partnern wie

dem Leibniz-Institut für Katalyse (LIKAT) in Rostock und als Auftragsforschung mit der EWE AG in Oldenburg. Im Folgenden werden die Forschungsschwerpunkte unserer Arbeitsgruppe kurz zusammenfassend dargestellt. Insgesamt lassen sich fünf Kernbereiche unserer aktuellen Forschungstätigkeit definieren:

a) Elektronisch angeregte Zustände von Molekülen auf Oberflächen

Während in unserer Arbeitsgruppe zahlreiche materialwissenschaftliche Fragestellungen unter Verwendung von Standardprogrammpaketen wie VASP, WIEN2k und CASTEP mit DFT-Supercellrechnungen untersucht werden, kommen bei der Beschreibung photochemischer Prozesse in der Regel eingebettete Cluster und quantenchemische ab initio Verfahren (HF, CASSCF, CASPT-2, CI) zur Anwendung. Insbesondere gelang uns in den letzten Jahren die Berechnung von multidimensionalen Potentialflächen elektronisch hochangeregter Zustände von



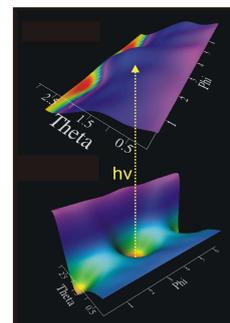
CO/C₆₀

Adsorbat-Substrat-Systemen unter Verwendung von Konfigurationswechselwirkungsverfahren (CI). Untersucht wurden dabei komplizierte offenschalige Substratoberflächen wie NiO(100) und Cr₂O₃(0001) und ihre Wechselwirkung mit zweiatomigen Molekülen wie CO und NO insbesondere im Hinblick auf elektronisch angeregte Zustände, die an der photoinduzierten Desorption der Adsorbate beteiligt sind. Neue Studien umfassen ähnliche Untersuchungen für die Desorption von CO von C₆₀-Molekülen und TiO₂(110)-Oberflächen und die Dissoziation von Wasser an Rutil- und Anatasoberflächen.

b) Hochdimensionale Wellenpaketrechnungen

In der Regel stellen diese Potentialflächen die Grundlage für quantendynamische Simulationen (zeitabhängige Wellenpaketdynamik) dar, wobei unser Programmpaket insbesondere auf die optimale Ausnutzung von Massivparallelrechnern ausgelegt ist. So wird auf diesen Architekturen durch einen optimalen Lastenausgleich und eine hocheffiziente Kommunikationsstrategie eine nahezu lineare Reduzierung der Rechenzeit als Funktion der Prozessorzahl auch bei Verwendung mehrerer 100 Prozessoren erzielt. Dies ermöglicht die routinemäßige Durchführung exakter quantendynamischer Rechnungen in einer Darstellung von z. Zt. 10¹⁰ bis 10¹¹ DVR-

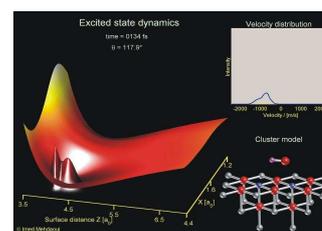
Basisfunktionen bzw. Gitterpunkten. Derartige stochastische Wellenpaketrechnungen auf multidimensionalen ab initio Potentialflächen ermöglichen ein weitgehendes Verständnis quantenzustands aufgelöster experimenteller Resultate zur laserinduzierten Desorption als einfachste photochemische Elementarreaktion auf Oberflächen und erlauben darüber hinaus die Vorhersage neuartiger Effekte bei zukünftigen Experimenten.



CO/Cr₂O₃(0001):
Photochemisch
relevante elektronische
Zustände

c) Optimale Kontrolle und Quantendissipation

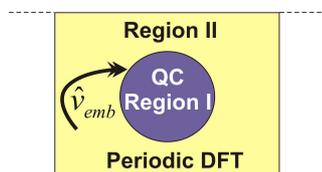
Im Rahmen der stochastischen Wellenpaketrechnungen wird die elektronische An- und Abregung jeweils als vertikaler Übergang approximiert. Eine vollständige Beschreibung des Desorptionsprozesses sollte jedoch sowohl den anregenden Laserpuls als zeitabhängige Störung berücksichtigen als auch ein realistisches Modell für die nichtadiabatische Relaxation des Wellenpaketes beinhalten. In Zusammenarbeit mit Prof. Dr. Ronnie Kosloff (Jerusalem) wird in unserer Arbeitsgruppe zur Beschreibung dieser dissipativen Prozesse ein „Surrogate Hamiltonian“ (SH) eingesetzt, der die elektronische Relaxation durch Kopplung des Systems an ein Bad aus Elektron-Loch-Paaren beschreibt. Auch für diesen von uns mit entwickelten Ansatz ist uns eine hocheffiziente massivparallele Implementierung gelungen, die einen direkten Vergleich zwischen Theorie und Experiment ermöglicht. Kürzlich gelang uns ferner die Implementierung und Anwendung der optimalen Kontrolltheorie (OCT) zur Berechnung optimaler ultrakurzer Laserpulse zur Minimierung quantendissipativer Effekte bei der photoinduzierten Desorption im System NO/NiO(100). Auch hier wurde die Dissipation im Rahmen der Theorie des „Surrogate Hamiltonian“ beschrieben.



NO/NiO(100):
Wellenpaketrechnungen

d) Einbettungstheorie

Neben den beschriebenen algorithmischen und methodischen Entwicklungen in der Quantendynamik beschäftigen wir uns auch mit der Weiterentwicklung



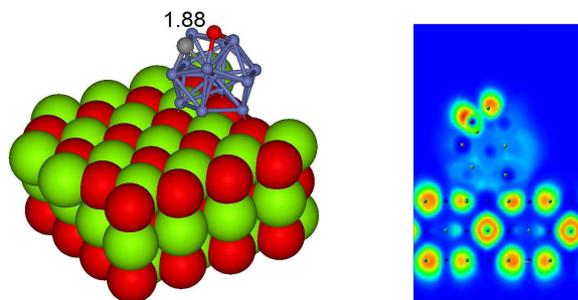
Einbettungstheorie:

Schematische Darstellung

quantenchemischer Verfahren bei materialwissenschaftlichen Fragestellungen. So gelang uns die Formulierung, Implementierung und Anwendung einer neuartigen Einbettungstheorie, in welcher die Vorteile von DFT-Supercellverfahren und ab initio Clusterrechnungen kombiniert werden. Hier wird ein Ausschnitt aus dem Festkörper (Cluster) mit quantenchemischen Methoden behandelt, während die Umgebung mittels DFT-Supercellverfahren beschrieben wird. Die Kopplung beider Regionen erfolgt über einen dichtebasierten, effektiven Einbettungsoperator, der z. Zt. partiell selbstkonsistent behandelt wird. Ein erfolgreiches Anwendungsbeispiel ist die Berechnung elektronisch angeregter Zustände von molekularen Adsorbaten auf Metalloberflächen. Die Weiterentwicklung der bestehenden Einbettungstheorie (vollständig selbstkonsistente Beschreibung von System und Umgebung) ist Gegenstand aktueller Forschung.

e) Sonstige Projekte

Insbesondere mit Arbeitsgruppen der Physikalischen, Anorganischen und Organischen Chemie existieren zahlreiche lokale Kooperationen, bei denen in der Regel Standardsoftwarepakete wie VASP, Gaussian09,



CO-Dissoziation an einem Co_{13} -Cluster auf einem $\text{MgO}(100)$ -Substrat

Turbomole oder Molcas zum Einsatz kommen. Im Rahmen der Kooperation mit der Physikalischen Chemie lag ein Schwerpunkt auf der Untersuchung von heterogenkatalysierten Prozessen wie der Fischer-Tropsch-Synthese

bzw. der Aufklärung der Rolle von Silber bei der Reaktivität von niedrigkoordinierten Goldoberflächen.

Einige ausgewählte Publikationen der letzten fünf Jahre

1. J. Mitschker, T. Klüner, Chem. Phys. Lett., **514** (2011), 83, *Adsorption and Photodesorption of CO from Single C_{60} Molecules Studied from First Principles*
2. M. Mehring, T. Klüner, Chem. Phys. Lett, **513** (2011), 212, *Understanding surface photochemistry from first principles: the case of $\text{CO}/\text{TiO}_2(110)$*
3. E. Asplund, T. Klüner, Phys. Rev. Lett., **106** (2011), 140404, *Optimal Control of open quantum systems applied to photochemistry on surfaces*
4. T. Klüner, Prog. Surf. Sci., **85** (2010), 279, *Photodesorption of diatomic molecules from surfaces: A theoretical approach based on first principles.*
5. I. Mehdaoui, T. Klüner, Phys. Chem. Chem. Phys., **10** (2008), 4559, *New mechanistic insight into electronically excited $\text{CO-NiO}(100)$: A quantum dynamical analysis.*

Lehre

In der Lehre wurde die Theoretische Chemie im Wintersemester 2005/2006 mit der Einführung der Bachelor-Master-Studiengänge im Fach Chemie in das Curriculum aufgenommen. Dabei ist die Theoretische Chemie sowohl im ersten Semester als auch im letzten Fachsemester des Bachelorstudiengangs (5. Fachsemester) mit drei eigenständigen Modulen vertreten. Zwei weitere Module im Masterstudiengang Chemie dienen der Spezialisierung in Fach Theoretische Chemie und bereiten auf eine Masterarbeit vor. Im Einzelnen bietet die Arbeitsgruppe Theoretische Chemie die nachfolgenden Lehrveranstaltungen an:

1.) ProChem: Propädeutikum Chemie (ca. 150 Teilnehmer, 1. Studiensemester)

Um den Studierenden den Übergang von der Schule an die Universität zu erleichtern, werden in ProChem mathematische und physikalische Inhalte vermittelt, die aus der Schule bekannt sein sollten, es in der Regel aber nicht

sind. In der Mathematik umfasst dies das Lösen einfacher Gleichungen, das Rechnen mit Exponenten und Logarithmen, die Kenntnis einfacher Funktionen, Kurvendiskussion, Differential- und einfache Integralrechnung. In der Physik sind dies grundlegende Begriffe der Mechanik und der Elektrizitätslehre.

2.) BM-2 Theoretische Chemie I: Theoretische und Quantitative Grundlagen der Chemie (ca. 150 Teilnehmer, 1. Studiensemester)

Dieses Modul besteht aus einer Vorlesung und zwei Übungen. In der Vorlesung „Atommodell und Chemische Bindung“ (2 SWS) werden, nach einer allgemeinen Einführung in die Struktur der Materie, die Grundlagen der Quantenmechanik behandelt. Einfache, analytisch lösbare Modelle wie das Teilchen im Kasten und der harmonische Oszillator bilden die Grundlage zum Verständnis quantenmechanischer Phänomene. Nach einer Behandlung des Wasserstoffatoms werden Mehrelektronenatome eingeführt und der Aufbau des Periodensystems der Elemente durch Aufbauprinzip und Pauli-Prinzip verständlich gemacht. Anschließend folgt eine semiquantitative Behandlung der Chemischen Bindung im Rahmen der Valenzbindungs- und Molekülorbitaltheorie. Dabei werden zweiatomige und einfache mehratomige Moleküle behandelt. Zu dieser Vorlesung wird eine Übung (1 SWS) in Kleingruppen angeboten. In einer weiteren Übung „Chemisches Rechnen“ (1 SWS) werden unabhängig von der Vorlesung „Atommodell und Chemische Bindung“ semesterbegleitend die Grundlagen der Stöchiometrie behandelt. Dabei werden Stoff- und Energieumsätze chemischer Reaktionen sowie Gleichgewichte allgemein und speziell in wässriger Lösung diskutiert.

3.) AM-12 Theoretische Chemie II: Quantenmechanik und Gruppentheorie (ca. 40 Teilnehmer, 5. Studiensemester)

Dieses Modul besteht aus zwei Vorlesungen (je 2 SWS) jeweils mit begleitenden Übungen (je 1 SWS) sowie einem Praktikum „Computerchemie“ (1 SWS). In der Vorlesung „Quantenmechanik und Statistische Thermodynamik“ werden ausführlich quantenmechanische Grundlagen behandelt. Ausgehend vom Versagen der klassischen Physik wird die Quantenmechanik axiomatisch eingeführt und auf Modellprobleme (Teilchen im Kasten, harmonischer Oszillator, starrer Rotator) angewendet. Als chemisch relevante Problematik wird die Quantentheorie des Wasserstoffatoms, der Mehrelektronenatome und

Moleküle vorgestellt, ohne quantitativ auf theoretisch-chemische Konzepte einzugehen. Über die Statistische Thermodynamik wird schließlich die Verknüpfung der mikroskopischen mit der makroskopischen Welt hergestellt. In der Vorlesung „Gruppentheorie“ werden Grundlagen und Anwendungen gruppentheoretischer Konzepte in der Praxis diskutiert. Die Inhalte der Vorlesungen und Übungen werden im Praktikum Computerchemie aufgegriffen.

4.) MM-7 Theoretische Chemie III: Einführung in die Quantenchemie (ca. 20 Teilnehmer, 7. Studiensemester, Mastermodul)

Die Vorlesung „Einführung in die Quantenchemie“ (2 SWS) mit begleitender Übung (1 SWS) behandelt ausgehend vom molekularen Hamiltonoperator verschiedene Lösungsansätze der molekularen Schrödingergleichung. Nach Einführung der Born-Oppenheimer Näherung werden ausführlich die Grundlagen der Hartree-Fock Theorie behandelt und im Rahmen von MO-LCAO die Roothaan-Hall Gleichungen hergeleitet. Nachfolgend werden übliche Verfahren zur Erfassung der Elektronenkorrelation (CI, MP-n, CC, CASSCF) sowie Dichtefunktionaltheorie ausführlich besprochen und in den Übungen vertieft. Begleitend zu Vorlesung und Übung findet im Rahmen eines theoretisch-chemischen Praktikums eine Einführung in die effiziente Programmierung in Fortran statt.

5.) MM-11 Theoretische Chemie IV: Molekulare Reaktionsdynamik (ca. 15 Teilnehmer, 8. Studiensemester, Mastermodul)

Dieses Modul besteht aus einer Vorlesung (2 SWS), einer Übung (1 SWS) und einem Praktikum (2 SWS). In Vorlesung und Übung werden die Grundlagen der molekularen Reaktionsdynamik mit einem Schwerpunkt auf numerischen Verfahren zur Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung behandelt. Das begleitende Praktikum erlaubt unter Verwendung des in unserer Arbeitsgruppe entwickelten Programmpakets DYN5D, die Inhalte der Vorlesung und Übung zeitnah an konkreten Beispielen anschaulich umzusetzen.

Arbeitsgruppe

Seit 2004 ist die Theoretische Chemie in Oldenburg kontinuierlich gewachsen und besteht im März 2012 aus sechs Doktoranden und Postdoktoranden



(D. E. Asplund, Dr. H. Hamann, Dr. L. Moskaleva, Dr. M. Sukumaran, Dr. W.-L. Yim, M.Sc. J. Mitschker), sowie aus zwölf Bachelor- und Masterstudierenden (B.Sc. M. Arndt, B.Sc. W. Donnelly, B.Sc. C. Lasar, B.Sc. F. Habecker, B.Sc. N. Burchardt, B.Sc. M. Fabian, B.Sc. H. Spieker, B.Sc. J. Warfsmann, T. Kolling, J. Spiegelberg, A. Paulmann, M. Wieckhusen). Hinzu kommen neben der Professur (Prof. Dr. T. Klüner) als permanente Mitarbeiter eine Stelle für Entwicklung und Administration (Dipl.-Chem. R. Röhse) und eine Sekretariatsstelle (S. Bartel).

Technische Ausstattung

Die Arbeitsgruppe ist mit modernsten Computerressourcen ausgestattet. Dabei wurde im Rahmen der Berufung im Jahr 2004 zunächst ein AMD Opteron Cluster mit insgesamt 390 Rechenkernen angeschafft. Seit 2011 betreibt die Fakultät für Mathematik und Naturwissenschaften einen weiteren Großrechner, der unter Federführung der AG Theoretische Chemie als Großgerät bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft beschafft wurde. Es handelt sich um ein IBM iDataPlex Cluster-system mit 1800 Rechenkernen, das durch ein SGI Altix UltraViolet-SMP-System mit 120 Rechenkernen zur

exklusiven Nutzung durch die Theoretische Chemie ergänzt wird. Großprojekte werden zudem auf nationalen Höchstleistungsrechenzentren, z.B. dem HLRS in Stuttgart durchgeführt. Darüber hinaus betreibt und administriert die AG Theoretische Chemie noch etwa 15 weitere arbeitsgruppeninterne Server für spezielle, z.B. IO-intensive, serielle Anwendungen.



Förderung

Unsere Arbeiten werden z. Zt. im Rahmen verschiedener Projekte durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG), den Fonds der Chemischen Industrie (FCI), die EWE AG, die Alexander von Humboldt-Stiftung (AvH), das Land Niedersachsen, die European Science Foundation (ESF) und das Hanse Wissenschaftskolleg (HWK) finanziell unterstützt.

Weitere Informationen zu unserer Arbeitsgruppe, unseren Forschungsprojekten und den Lehrveranstaltungen finden Sie unter <http://www.chemie.uni-oldenburg.de/pc/kluener/>.

3.2 „Theoretische Chemie 3“ an der Technischen Universität München

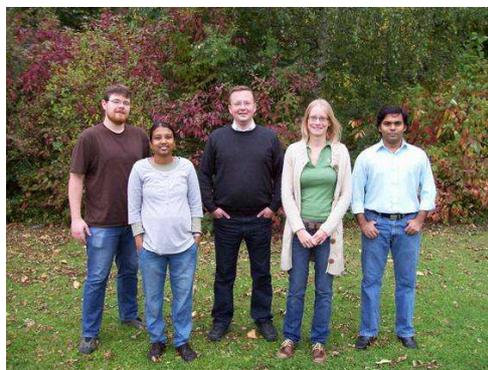


Prof. Dr. Mathias Nest

**Dynamische Prozesse in Molekülen
und an Grenzflächen**

Fakultät für Chemie

TU München



Die Fakultät

Die Fakultät für Chemie der TU München ist eine der größten Chemiefakultäten Deutschlands: Mit mehr als 1200 Studenten (inklusive Biochemie und Chemieingenieurwesen) und 30 Professoren deckt sie ein besonders breites Spektrum ab. Neben dem üblichen Kanon der Lehrbereiche für Anorganische, Organische und Physikalische Chemie kann man sich hier auch auf seltenere Bereiche wie Radiochemie, Wasserchemie oder Bauchemie spezialisieren. Der inhaltliche Schwerpunkt der Fakultät liegt allerdings auf den Bereichen Katalyse/Materialien und Biologische Chemie. Im Bereich Katalyse und Materialien werden sowohl homogene als auch heterogene Katalysatoren synthetisiert und charakterisiert. Ein Spezialgebiet hier ist die heterogene Katalyse mit nanostrukturierten Oberflächen. Der zweite Schwerpunkt Biologische Chemie beschäftigt sich hauptsächlich mit Struktur-Funktionsbeziehungen von Proteinen, sowie mit der Synthese pharmakologisch wirksamer Naturstoffe.

Die Theoretische Chemie ist zur Zeit mit drei Professuren an der TU München vertreten. Die Arbeitsgruppe von Prof. W. Domcke befasst sich mit der Modellierung photochemischer Prozesse, nicht-linearer Spektroskopie und Wellenpaketdynamik. Der Schwerpunkt der Arbeitsgruppe von Prof. K. Reuter ist die Multiskalen-Modellierung von Reaktionen und Materialien, von der ab initio Ebene bis hin zur Thermodynamik von katalytischen Reaktoren. Die Arbeit der dritten Gruppe, meiner eigenen, werde ich in den folgenden Abschnitten kurz vorstellen.

Kohärente Kontrolle

Unser Hauptarbeitsfeld ist die ab initio Elektronendynamik, d.h. wir lösen die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung für Vielelektronensysteme. Dazu erweitern wir die Standardmethoden der Elektronenstrukturtheorie wie HF, MCSCF und CI, auf die explizit zeitabhängige Domäne. Kurz gesagt bedeutet das, dass alle Größen die normalerweise variationell optimiert werden, nun zeitabhängig sein können, und mit Hilfe eines zeitabhängigen Variationsprinzips bestimmt werden. Explizit zeitabhängige Dichtefunktionaltheorie stellt dabei einen Spezialfall dar, der weiter unten genauer beschrieben wird. Für alle diese Methoden wurden in unserer Gruppe Programmpakete entwickelt.

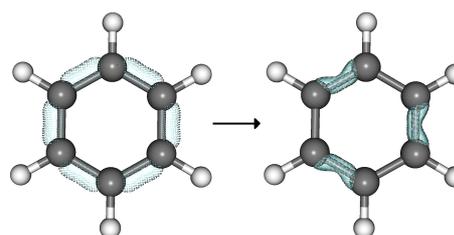


Abb. 1: Elektronischer Übergang eines Benzolmoleküls vom aromatischen Grundzustand in einen pseudo-1,3,5-Cyclo-Hexatrien-Zustand.

Die Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung bedeutet, dass wir an Prozessen interessiert sind, die z. Bsp. durch eine äußere Störung des Systems ausgelöst sein können, und nicht so sehr an stationären Zuständen. Bei der kohärenten Kontrolle wird diese Idee nun umgedreht: Gesucht ist eine Störung, zum Beispiel durch ein externes Laserfeld, die das System in einen gewünschten Zustand treibt. Für die Suche nach einem solchen La-

serfeld gibt es verschiedenen Strategien. Zum einen ist es möglich, das Laserfeld zu parametrisieren, und dann die optimalen Parameter zu bestimmen, die ein Maximum an Population in den gewünschten Zustand transferieren. Die Optimierungsstrategie lässt sich so auf die Suche eines lokalen/globalen Maximums einer Funktion zurückführen, wofür verschiedene etablierte Algorithmen existieren. Zum anderen gibt es die Optimal Control Theory. Hier wird ein Funktional definiert, welches vom Laserfeld, dem Anfangszustand und dem Zielzustand abhängt. Durch Variation des Funktionals erhält man Bestimmungsgleichungen, die durch wiederholte Vorwärts- und Rückwärtspropagationen in der Zeit gelöst werden können. Beide Verfahren finden in unserer Gruppe Verwendung.

Exemplarisch sollen hier zwei Anwendungen gezeigt werden, die die Möglichkeiten der kohärenten Kontrolle elektronischer Zustände illustrieren. Abbildung 1 illustriert die Anregungen eines Benzolmoleküls von seinem aromatischen Grundzustand in einen angeregten, nicht-aromatischen Zustand, der dem 1,3,5-Cyclo-Hexatrien ähnelt[1]. Da der aromatische Grundzustand besonders stabil ist, ändert sich somit auch die Reaktivität des Moleküls. Der Zustand mit alternierenden Doppelbindungen ist kein Eigenzustand, und verändert sich deshalb mit der Zeit. Konkret heisst das hier, dass ein Ringstrom induziert wird, der zu einem periodischen (Periode ≈ 1 fs) Auftauchen eines 2,4,6-Cyclo-Hexatrien Zustands führt.

Als zweites Beispiel sei hier die „Abschaltung“ der elektronischen Korrelation in Atomen und Molekülen genannt. Unter Korrelation versteht man meistens etwas statisches, das eine Eigenschaft des Elektronensystems im Grundzustand ist, und das quantenchemische Rechnungen so aufwendig macht. Korrelation lässt sich aber auch von einem dynamischen Standpunkt aus betrachten: Man kann zum Beispiel die Fragen stellen, ob es möglich ist mit einem Laserpuls die Korrelation auszuschalten, und auf welcher Zeitskala sich die Korrelation durch Elektron-Elektron-Stöße wieder aufbaut[2]. Wir konnten zeigen, dass sich Atome von Erdalkalimetallen weitaus besser für solche Experimente eignen, als Edelgasatome: Zum einen sind die Laserpulse, die zur Kontrolle benutzt werden, deutlich einfacher. Zum anderen baut sich die Korrelation erst auf einer vergleichsweise langen Zeitskala von etwa 200 as auf, während sie bei Edelgasen schon nach nur 20 as wieder aufgebaut ist.

Thermalisierung

Betrachtet man, wie die Thermalisierung von Elektronen in Metallen üblicherweise in Lehrbüchern beschrieben wird, so findet man als Basis häufig ein Modell von nicht-wechselwirkenden Teilchen. Für solche Teilchen kann man dann Begriffe wie Fermi-Energie, Fermi-Dirac-Verteilung etc. herleiten. Allerdings sind physikalische Elektronen stark wechselwirkend, so dass es auf den ersten Blick überraschend erscheint, dass solche Begriffe in der Praxis tatsächlich nützlich sind. N.W. Ashcroft und N.D. Mermin schreiben dazu in ihrem Buch „Solid State Physics“: „Landau cut this Gordian knot by acknowledging that the independent *electron* picture was not a valid starting point. He emphasized, however, that the argument described above remains applicable, provided that an independent “something” picture is still a good first approximation. He christened the “somethings” *quasiparticles* ...“. Wir haben nun in einem unserer Projekte versucht, die Entstehung dieser Quasipartikel mit Hilfe von ab initio Elektronendynamik zu verstehen. Statt echter Metalle haben wir aus Gründen der Rechenzeit allerdings dafür Natrium-Metallcluster verwendet[3, 4, 5]. Zuerst stellt sich dabei natürlich die Frage, ob bzw. wann Cluster gross genug für einen sinnvollen Vergleich sind. Abbildung 2 vergleicht dazu die Entwicklung der Entropie des Elektronensystems nach Anregung mit einem breitbandigen Laserpuls von 1 fs Dauer. Während ein Na_4 -Cluster nur Oszillationen zeigt, sieht man

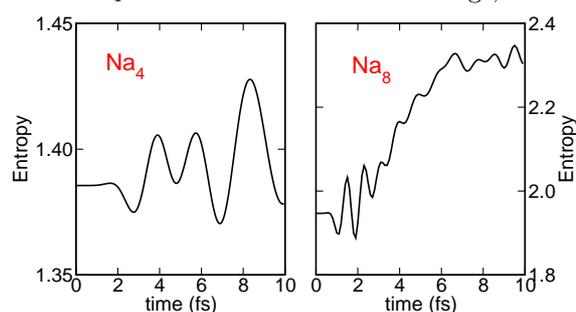


Abb. 2: Entropie-Entwicklung des Elektronensystems nach Anregung durch einen Laserpuls von 1 fs Dauer. Der Na_8 -Cluster zeigt einen fast unidirektionalen Anstieg, der auf eine Equilibrierung hindeutet.

beim Na_8 -Cluster einen beinahe unidirektionalen Anstieg, der auf eine Equilibrierung hindeutet. Damit drängen sich u.a. die Fragen auf: Können wir den Elektronen eine Temperatur zuordnen, und lassen sich Quasiteilchen finden, die eine Fermi-Dirac-Verteilung zeigen?

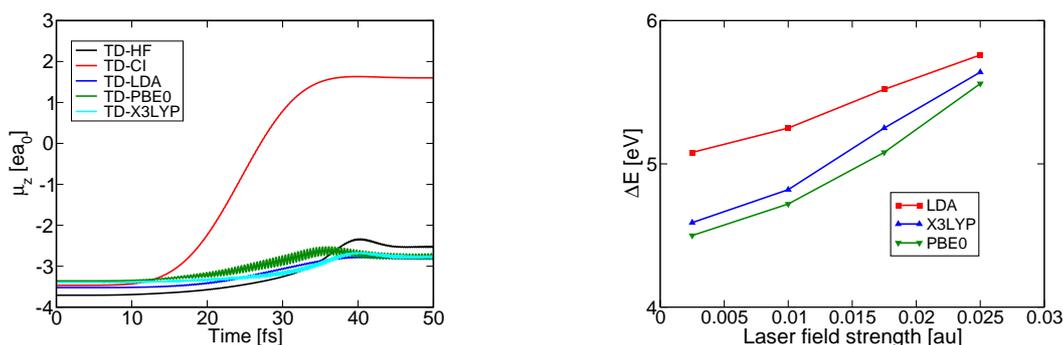


Abb. 3: Links: Zeitabhängiges Dipolmoment bei einer Populationsinversion in LiCN. Weder TD-HF noch TD-DFT reproduzieren die CI-Rechnung. Rechts: Die vertikale Anregungsenergie in einem Li_2C_2 Molekül hängt von der Laserfeldstärke, und damit von der aufgenommenen Energie, ab, mit der der Übergang getestet wird.

Die erste Frage können wir mit Ja beantworten: Folgen wir Boltzmanns Definition einer Temperatur

$$S(E) = k_B \ln \Omega(E) \quad \frac{dS}{dE} = \frac{1}{T}$$

wobei $\Omega(E)$ eine Zählfunktion ist, die die Zahl der Zustände bei einer Energie E angibt, so erhält man eine Temperatur T mit einer sinnvollen Abhängigkeit von der vom Cluster aufgenommenen Energie E . Die Suche nach den Quasiteilchen dagegen war bisher leider nicht erfolgreich. Alle überprüften Einteilchenzustände zeigten eine Populationen, die signifikant von der Fermi-Dirac-Verteilung abwichen.

TD-DFT

Zeitabhängige Dichtefunktionaltheorie (TD-DFT) macht einen grundsätzlich anderen Ansatz als die wellenfunktionsbasierten Methoden, die bis hierher besprochen wurden. Wie in TD-HF werden nur Orbitale mit Hilfe eines effektiven Einteilchen-Hamiltonoperators propagiert:

$$\dot{\varphi} = -\frac{i}{\hbar} \hat{h}_{\text{eff}}[\rho] \varphi$$

Ohne auf die grundsätzlichen Probleme von TD-DFT hier eingehen zu wollen, müssen zwei Eigenschaften dieser Bewegungsgleichung erwähnt werden: Erstens, da der effektive Hamiltonoperator selbst von der Dichte, und damit von den Orbitalen abhängt, sind die Gleichungen nichtlinear. Und zweitens, da es sich bei der Dichte um eine reduzierte (ausintegrierte) Größe handelt, müsste der Hamiltonoperator eigentlich einen sogenannten memory kernel enthalten. Da die Form dieses kernels aber nicht bekannt ist, verwendet man üblicherweise die adiabatische Näherung, d.h., die instantane Dichte wird in

das Austausch-Korrelations-Funktional eingesetzt. Trotz dieser schweren Näherung erfreut sich TD-DFT großer Beliebtheit, da es sehr schnell ist, und sich deshalb große Systeme behandeln lassen. In den vergangenen zwei Jahren haben wir uns deshalb hauptsächlich mit der Frage befasst, welche Prozesse sich mit TD-DFT korrekt und verlässlich beschreiben lassen [6, 7]. Wir haben dafür einen pragmatischen Weg gewählt, und die vorhergesagte Dynamik mit qualitativ korrekten TD-CI Rechnungen verglichen.

Kurz zusammengefasst waren unsere Schlussfolgerungen wie folgt: i) Eine elektronische Populationsinversion ist mit TD-DFT praktisch unmöglich, zumindest wenn einfache parametrisierte Laserpulse verwendet werden. Dies ist, wie auch alle weiteren Ergebnisse, unabhängig vom verwendeten Funktional. Als Beispiel haben wir das LiCN-Molekül gewählt (siehe auch [8]), wo die Inversion mit einer starken Änderung des Dipolmoments einhergeht. Abbildung 1, links, zeigt, wie den Unterschied zwischen TD-DFT und TD-HF auf der einen, und TD-CI auf der anderen Seite. ii) Soll nur eine Population von 50% in einen angeregten Zustand gebracht werden, dann ist dies auch mit TD-DFT möglich, wenn die permanenten Dipolmomenten der beteiligten Zustände nicht zu verschieden sind. Dies ähnelt dem bekannten Ladungstransferproblem von linear response TD-DFT, hat aber wahrscheinlich andere Ursachen. iii) Die Antwort des Elektronensystems auf ultrakurze Laserpulse (mit nur wenigen Schwingungszyklen) ist dann qualitativ richtig, wenn nicht zuviel Energie in das System gepumpt wird. In anderen Worten: wenn die Abweichung von der linearen Antwort nicht zu stark ist. iv) Benutzt man einen Laserpuls um die Elektronen zu Schwingungen anzure-

gen, und fourier-transformiert dann das zeitabhängige Dipolmoment, so kann man aus den Linienpositionen vertikale Anregungsenergien bestimmen. Führt man diese Rechnung mit TD-DFT aus, so findet man, dass diese Energien von der Laserfeldstärke und der dadurch aufgenommenen Energie abhängen, s. Abb. 3, rechts (für Li_2C_2). Dies ist ein ernstes Problem für die Kombination von TD-DFT mit kohärenter Kontrolle, da Strategien für letztere häufig auf Resonanzbedingungen aufbauen.

Kerndynamik mit krummlinigen Koordinaten

Die Entwicklung quantenmechanischer Methoden zur Beschreibung von Molekülschwingungen, jenseits der harmonischen Näherung, gewinnt zunehmend an Bedeutung, da durch moderne nichtlineare und multidimensionale Schwingungsspektroskopietechniken immer detailliertere Informationen über das dynamische Verhalten von Molekülen zugänglich werden. Obwohl Kernbewegungen weitestgehend den Gesetzen der klassischen Mechanik folgen, ist eine quantenmechanische Beschreibung unabdingbar, um beispielsweise Phaseninformationen zu erhalten, die in multidimensionalen Spektren enthalten sind.

In Born-Oppenheimer-Näherung bewegen sich die Kerne auf Potentialhyperflächen, die sich durch Mehrteilchenentwicklungen in krummlinigen Koordinaten effizient nähern lassen. Diese Koordinaten führen im Allgemeinen zu einer wesentlich besseren Beschreibung von Molekülschwingungen als beispielsweise kartesische Normalmoden. Während sich das Potential in krummlinigen Koordinaten einfach darstellen lässt, stellt die Berechnung der kinetischen Energie eine größere Herausforderung dar. Für kleinere Moleküle und bestimmte Koordinatensysteme sind analytische Ausdrücke bekannt. In größeren Systemen hingegen müssen ebenfalls genäherte Operatoren verwendet werden, falls die Wahl der Koordinaten nicht stark eingeschränkt werden soll. Die hierarchische Entwicklung des kinetischen Energieoperators erweist sich als vielversprechendes Werkzeug zur Konstruktion solcher Näherungen [9].

Sinnvolle Koordinaten müssen also sowohl eine gute Näherung der Potentialhyperfläche als auch des kinetischen Energieoperators ermöglichen. Die Entwicklung von Methoden zur Konstruktion solcher Koordinaten für grö-

ßere Systeme ist daher ein Schwerpunkt unserer Arbeit. Zugleich werden Techniken, wie z. B. die Konfigurationswechselwirkungsmethode für Molekülschwingungen, optimiert und entwickelt, um den Hamiltonoperator in solchen Koordinaten effizient darzustellen und zu nähern.

Literatur

- [1] I. S. Ulusoy, M. Nest, *Correlated electron dynamics: How aromaticity can be controlled*, JACS **133**, 20230 (2011).
- [2] M. Nest, I. Ulusoy, T. Klamroth, P. Saalfrank, *Electron correlation dynamics in atoms*, eingereicht
- [3] T. Klamroth, M. Nest, *Ultrafast electronic excitations of small sodium clusters and the onset of electron thermalization*, PCCP, **11**, 349 (2009).
- [4] M. Nest, *Origin of dissipative dynamics in correlated few electron systems*, Chem. Phys. **370**, 119 (2010).
- [5] M. Nest, *Can electron equilibration in excited Na_8 clusters be interpreted as thermalization?*, Int. J. Quant. Chem. **111**, 505 (2011).
- [6] S. Raghunathan, M. Nest, *Critical examination of explicitly time-dependent density functional theory for coherent control of dipole switching*, JCTC **7**, 2492 (2011).
- [7] S. Raghunathan, M. Nest, *The Lack of Resonance Problem in Coherent Control with Real-Time Time-Dependent Density Functional Theory*, JCTC **8**, 806 (2012).
- [8] P. Krause, T. Klamroth, P. Saalfrank, *Time-dependent configuration-interaction calculations of laser-pulse-driven many-electron dynamics: Controlled dipole switching in lithium cyanide*, J. Chem. Phys. **123**, 074105 (2005).
- [9] D. Stobusch, Ch. Scheurer, *The hierarchical expansion of the kinetic energy operator in curvilinear coordinates extended to the vibrational configuration interaction method*, J. Chem. Phys. **135**, 144101 (2011).

4 Nachrufe

4.1 Prof. W.A. Bingel, Göttingen

Werner Bingel wurde 1922 in Marburg geboren und hat an der dortigen Universität Physik studiert. Dem Diplomabschluss im Jahre 1950 folgte 1952 die Promotion bei Erich Hückel „Zur Theorie der Lösungen von Alkalimetallen in flüssigem Ammoniak“. Zu diesem Thema veröffentlichte er 1953 alleinautorisch zwei Arbeiten in den *Annalen der Physik*. Von 1953 – 1957 war Werner Bingel bei der Forschungsstelle für Spektroskopie der Max-Planck-Gesellschaft in Hechingen tätig. In dieser Zeit beschäftigte er sich mit den Konzepten der Bindungsordnung und der freien Valenz in der Quantenchemie, der Berechnung atomarer und molekularer Integrale und mit der Elektronenstruktur und Lichtabsorption des Benzylradikals. Von 1957 bis 1960 begab sich Werner Bingel auf die wissenschaftliche Wanderschaft, zunächst zu Hertha Sponer am Physics Department der Duke University in Durham/North Carolina. Aus dieser Zeit entstammen zwei Publikationen zum Verhalten der Potentialkurven zweiatomiger und mehratomiger Moleküle bei kleinen Abständen zwischen den Atomkernen und eine kleine Arbeit, eine Erweiterung der Davydovschen Theorie der Molekülkristalle betreffend. Für seinen zweiten transatlantischen Forschungsaufenthalt ging Werner Bingel 1959 zu Robert Parr an das Department of Chemistry am Carnegie Institute of Technology in Pittsburgh. Parr war seit 1957 Full Professor in Pittsburgh und einer der drei Väter eines berühmten semi-empirischen Verfahrens für π -Elektronensysteme, der Pariser-Parr-Pople oder PPP-Methode. In Pittsburgh begann sich Bingel für die analytischen Eigenschaften von Dichtematrizen zu interessieren, einem damals sehr aktuellen Gebiet mit erheblichem Zukunftspotential. Aus Amerika zurückgekehrt wurde er wissenschaftlicher Mitarbeiter bei Heinz Werner Preuß am MPI für Physik und Astrophysik in München, unterbrochen von einer Beurlaubung, um 1961 - 1962 eine Stelle als Visiting Associate Professor an der University of Florida in Gainesville anzutreten. Vor allem auf Betreiben Wilhelm Josts gelang es, 1963 eine neue Professorenstelle für Theoretische Chemie an der Universität Göttingen einzurichten, auf welche Werner Bingel berufen wurde. Der erste Lehrstuhl für Theoretische Chemie in der Bundesrepublik Deutschland hatte seine Räumlichkeiten in der Göttinger Innenstadt in

unmittelbarer Nähe des von Walter Nernst begründeten Instituts für Physikalische Chemie. Er hatte anziehende Wirkung und es kamen talentierte Mitarbeiter. Reinhart Ahlrichs und Volker Staemmler, beide aus der Physik stammend, fertigten sowohl ihre Diplomarbeit als auch ihre Doktorarbeit bei Werner Bingel an. Als Habilitand kam 1964 Werner Kutzelnigg hinzu, der das wissenschaftliche Spektrum des Lehrstuhls stark bereicherte. Die Zeit zwischen 1964 und 1970 darf als Blütezeit der Göttinger Theoretischen Chemie betrachtet werden. In ihr wurde wesentliche Pionierarbeit zur Lösung des Elektronenkorrelations-Problems bei Atomen und kleinen Molekülen geleistet. Mit dem Jahr 1970 gab es allerdings eine gewisse Zäsur. Werner Kutzelnigg trat eine neugeschaffene Professur für Theoretische Chemie an der TH Karlsruhe an und nahm Volker Staemmler mit. Reinhart Ahlrichs hatte Göttingen bereits 1969 verlassen, um als Postdoktorand bei Clemens Roothaan an der University of Chicago zu arbeiten; er ging anschließend zur Habilitation nach Karlsruhe. Am Lehrstuhl in Göttingen verblieben die Doktoranden Rolf-Jürgen Koch, Bernd Gabel und Volker Dyczmons. Hinzu kam Bruno Klahn, der zunächst über den Elektronendichtequotienten zweiatomiger Moleküle seine Diplomarbeit anfertigte und zu diesem Thema mit Werner Bingel zwei Arbeiten in *Theoretica Chimica Acta* publizierte. In seiner Doktorarbeit beschäftigte sich Klahn mit dem Konvergenzverhalten der Rayleigh-Ritzschen Methode in der Quantenchemie; hieraus gingen gemeinsam mit Bingel drei schöne Arbeiten hervor. Bis 1975 wurde insgesamt die ansehnliche Zahl von 8 Promotionen abgeschlossen. In der Folgezeit wurde Klahn Bingels zweiter Habilitand und beschäftigte sich mit Themen mathematisch-physikalischer Natur. Nach seiner Habilitation im Jahre 1986 verließ er den akademischen Bereich zugunsten der Informationstechnologie. Der Göttinger Lehrstuhl trug wesentlich zur Entwicklung der Theoretischen Chemie in Deutschland und anderen Ländern bei. 1971 organisierten Werner Bingel und seine Mitarbeiter das Symposium für Theoretische Chemie der deutschsprachigen Länder. Bingel war später mehrere Jahre lang Vorsitzender des Organisationskomitees dieser wichtigen Tagungsreihe. Auf den Symposien übernahm er Sitzungsleitun-

gen und zeichnete sich durch kritische Diskussionsbeiträge aus, vor allem bei fundamentalen und analytischen Problemen der Quantenchemie. Nach dem Weggang von Bruno Klahn wurde es ruhig am Lehrstuhl für Theoretische Chemie, der inzwischen im neuen Institut für Physikalische Chemie auf dem Nordcampus angesiedelt war. Auf einer Dauerstelle verblieben war Volker Dyczmons, der 1974 seine Doktorarbeit abgeschlossen hatte und sich danach mit Modellrechnungen zur Entstehung von Planetensystemen beschäftigte. Bingel veröffentlichte seine letzten beiden wissenschaftlichen Publikationen 1981; eine davon war eine schöne Widmungsarbeit zum 70. Geburtstag von Oskar Glemser in der „Angewandten Chemie“, gemeinsam verfasst mit Wolfgang Lüttke. Ins-

gesamt war Bingel Autor von 50 Originalarbeiten und von einem Lehrbuch zur „Theorie der Molekülspektren“, welches auch in die englische Sprache übersetzt wurde. Nach seiner Emeritierung im Jahre 1991 hat Werner Bingel das Institut für Physikalische Chemie nur noch spärlich besucht; Einladungen zu Vortrags- oder Festveranstaltungen hat er höchst selten wahrgenommen. In den letzten 2 Jahren seines Lebens ging es ihm gesundheitlich zunehmend schlechter. Er starb am 28. Oktober 2011 im Seniorenzentrum Weende am Max-Born-Ring und wurde auf eigenen Wunsch in aller Stille im Friedwald Plesse beigesetzt.

Prof. Dr. Peter Botschwina, Göttingen

4.2 Prof. Peter Otto, Erlangen

Es ist zwar schon ziemlich genau ein Jahr her, dass Prof. Dr. Peter Otto, Lehrstuhl für Theoretische Chemie an der Universität Erlangen-Nürnberg, nach schwerer Krankheit verstorben ist. Dennoch ist es unbedingt angebracht – lieber spät als gar nicht – an diesen geschätzten Lehrer und Forscher zu erinnern.

Peter Otto wurde am 10. Mai 1943 in Bayreuth geboren. Er studierte von 1962 bis 1967 Chemie an der Maximilians-Universität München und schloss dort unter R. Huisgen im Jahre 1970 seine Doktorarbeit „Zur Kenntnis der Cycloaddition der Ketene“ ab. Danach war er zwei Jahre als Assistent bei L. Salem an der Universität in Paris-Süd in Orsay, anschließend bis 1975 bei G.L. Hofacker am Lehrstuhl für Theoretische Chemie an der Technischen Universität München tätig. 1975 ging er mit J. Ladik an die Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg nach Erlangen, wo er 1979 über ein Thema zur Theorie der intermolekularen Wechselwirkung habilitierte. Es folgten weitere Lehr- und Wanderjahre am Department of Applied Mathematics in Waterloo, Kanada (bei J. Cizek) und bei IBM in Poughkeepsie, USA (bei E. Clementi), bevor Otto ab dem Jahre 1982 eine außerordentliche Professur für Theoretische Chemie an der Universität Erlangen übernahm, die er bis zu seinem Ausscheiden im September 2008 innehatte. Neben der Theorie intermolekularer Wechselwirkungen war ein Hauptarbeitsgebiet von Peter Otto die Untersuchung optoelektronischer Eigenschaften von Molekülen und Polymeren, besonders auch der Einfluss

von Schwingungen und der Elektronenkorrelation auf Response-Eigenschaften.

Ich darf mit Fug und Recht behaupten, dass Peter Otto einer meiner Hauptmotivatoren war, das Feld der Theoretischen Chemie zu betreten. Er gehörte zu jenen Hochschullehrern, die es verstanden, mit Humor und großem Sachverstand dieses Anfang der 80er Jahre des letzten Jahrhunderts von manchen noch als esoterische Randerscheinung der Chemie betrachtete Gebiet den Studenten nahe zu bringen und einige von uns dafür geradezu zu begeistern. Peter Otto stand selten im internationalen Rampenlicht und war schon gar kein Mitglied der Schickeria der Theoretischen Chemie, falls es eine solche geben sollte. Vielmehr war er jemand, der neben seiner Forschung stets für Studenten, Diplomanden und Doktoranden da war. Sein Büro stand jederzeit offen und so manches Problem, das andere und ich zu ihm brachten, machte er bald zu seinem eigenen. Dass ihm der akademische Nachwuchs besonders am Herzen lag, wird auch dadurch deutlich, dass Peter Otto nach seiner Pensionierung noch eine Zeit lang als außerordentliche Lehrkraft am Gymnasium in Erlangen tätig war. Man kann froh sein, dass es an vielen Universitäten diese unlauten, eher im Hintergrund arbeitenden Hochschullehrer wie Peter Otto gab und gibt, die, gleichwohl, für die Studenten und für das Fach selbst, so unendlich wertvoll sind. Peter Otto verstarb am 13. April 2011 im Kreis seiner Familie.

Prof. Dr. Peter Saalfrank, Potsdam

5 Tagungskalender

Inländische Tagungen

25. 4. 2012, Rostock, Bunsen-Kolloquium: *Molecular Thermodynamics of Complex Systems*
<http://www.ludwig.chemie.uni-rostock.de/bk12/>

17.5.-19.5.2012, Leipzig, Bunsentagung 2012 *Ionische Flüssigkeiten* <http://www.bunsen.de/Veranstaltungen/Bunsentagungen-p-27.html>

Ausländische Tagungen

4.6.-6.6.2012, Omaha (Nebraska, USA), *International Conference on Computational Science (ICCS 2012)*,
<http://www.iccs-meeting.org/>

25.6.-30.6.2012, Boulder (Colorado, USA), *14th International Congress of Quantum Chemistry (14th ICQC)*,
<http://www.colorado.edu/chemistry/icqc2012/>

18.6.-22.6.2012, Telluride (Colorado, USA), *Satellite Symposia: Low-scaling and Unconventional Electronic Structure Techniques*,
<http://www.colorado.edu/chemistry/icqc2012/>

20.6.-22.6.2012, Minneapolis (Minnesota, USA), *Satellite Symposia: Interfacing Electronic Structure with Dynamics*,
<http://www.colorado.edu/chemistry/icqc2012/>

20.6.-22.6.2012, Santa Fe (New Mexico, USA), *Satellite Symposia: Quantum Chemistry of the Heavy Elements*,
<http://www.colorado.edu/chemistry/icqc2012/>

21.6.-23.6.2012, Los Angeles (Kalifornien, USA), *Satellite Symposia: Quantum Mechanics and Molecular Dynamics of Chemical and Biological Reactivity*,
<http://www.colorado.edu/chemistry/icqc2012/>

1.7.-3.7.2012, Urbana (Illinois, USA), *Satellite Symposia: Computational Chemistry at the Petascale*,
<http://www.colorado.edu/chemistry/icqc2012/>

6.-6.6.2012, Zürich (Schweiz), *Accurate Methods for Accurate Properties. An international Conference in Celebration of the 60th Birthday of Peter Taylor*
<http://www.oci.uzh.ch/diversa/petertaylor60/>

18.6.-22.6.2012, Frankfurt am Main, *ACHEMA 2012*,
<http://www.Achema.de>

23.9.-27.9.2012, Karlsruhe, *48th Symposium on Theoretical Chemistry*, <http://www.ipc.kit.edu/stc2012/>

1.7.-3.7.2012, Boulder (Colorado, USA), *Satellite Symposia: Coupled-Cluster Theory and Related Techniques*,
<http://www.colorado.edu/chemistry/icqc2012/>

5.6.-8.6.2012, Winston-Salem (NC USA), *24th Annual Workshop on Recent Developments in Electronic Structure Theory*,
<http://es12.wfu.edu>

26.6.-29.6.2012, Montreal (Kanada), *CCG UGM & Conference*, <http://www.chemcomp.com/ugm-2012.htm>

2.7.-5.7.2012, Girona (Spanien), *Modeling of Biochemical Systems*, <http://iqc.udg.edu/xgironaseminar>

22.7.-27.7.2012, West Dover, (Vermont USA), *Gordon Research Conferences: Computational Chemistry*,
www.grc.org

30.8.-1.9.2012, Queenstown (Neuseeland), *Molecular Modelling Meeting (MM1012)*, www.mm2012.org.nz

2.9.-7.9.2012, Pavia (Italien), *Theory and Application of Computational Chemistry (TACC-2012)*,
<http://www.tacc2012.org/>

2.9.-5.9.2012, Mariapfarr (Österreich), *Central European Symposium on Theoretical Chemistry*
<http://www.uni-graz.at/tchwww/CESTC2012/>

10.9.-14.9.2012, Wroclaw (Polen), *5th conference Modeling & Design of Molecular Materials (MDMM)*,
<http://mdmm.pl/2012/>

12.9.-14.9.2012, Pisa (Italien), *International Meeting on Atomic and Molecular Physics and Chemistry (IM-AMPC2012)*, <http://imampc2012.sns.it/>

Tagungen 2013

DPG-Tagungen 2013

www.dpg-physik.de/veranstaltungen/tagungen/tagung_2013.html

25.2.-1.3.2013, Jena, DPG-Frühjahrstagung

4.3.-8.3.2013, Dresden, 77. Jahrestagung der DPG und DPG-Frühjahrstagung

10.3.-15.3.2013, Regensburg, DPG-Frühjahrstagung der Sektion *Kondensierte Materie (u. a. Chemische Physik)*

18.3.-22.3.2013, Hannover, DPG-Frühjahrstagung der Sektion *AMOP (u. a. Atomphysik, Molekülphysik)*

11./13.3.2013, Berlin (FU), Chemiedozententagung

12.3.2013, Berlin (FU, Henry Ford-Bau), *Festsymposium anlässlich 125 Jahre Angewandte Chemie*

www.gdch.de/veranstaltungen/tagungen/tagungen-2013/cdt-2013.html

2.6.-7.6.2013, Lugano (Schweiz), *7th Congress of Molecular Quantum Mechanics*
www.mqm2013.ethz.ch/

25.8.-31.8.2013, Budapest (Ungarn), *8th Congress of the International Society of Theoretical Chemical Physics*
<http://coulson.chem.elte.hu/istep8/index.php>

1.9.-4.9.2013, Darmstadt, GDCh-Wissenschaftsforum Chemie 2013
www.gdch.de/veranstaltungen/tagungen/tagungen-2013/wifo-2013.html

Sept. 2013, Erlangen,
49th Symposium on Theoretical Chemistry
Organisation: Prof. Görling
E-mail: Andreas.Goerling@chemie.uni-erlangen.de

Weitere Informationen können über <http://helfrichtub.de/helfrichhome.htm> bzw. über <http://HelfrichTUB.de/tagungen.html> eingesehen werden. Wir danken Herrn Prof. Helfrich für die wichtige Zuarbeit zum Tagungskalender über Jahre hinweg. Der Leser sei auch auf andere Tagungskalender hingewiesen:

- Arbeitsgemeinschaft Theoretische Chemie, Symposien, Tagungen
www.theochem.de/agtc.home.html
- Cecam Workshops
<http://www.cecama.org/workshops.html>
- Deutsche Physikalische Gesellschaft, Tagungen
<http://www.dpg-physik.de/veranstaltungen/tagungen/kalender.html>
- CONFMENU von Prof. Young S. Kim
<http://www.ysfine.com>
- Gesellschaft Deutscher Chemiker, Tagungen
<https://www.gdch.de/veranstaltungen/tagungen.html>
- Bunsen-Gesellschaft, Versammlungen und Veranstaltungen
<http://www.bunsen.de/>
- Konferenzdienst Mandl
<http://www.conference-service.com>

6 DFG-Mitteilungen

Die folgenden Mitteilungen wurden uns von Frau Dr. Johanna Kowol-Santen von der DFG zugestellt – herzlichen Dank dafür.

Fachkollegienwahl 2011:

Mit der Kenntnisnahme durch den DFG-Senat steht das Ergebnis der Fachkollegienwahl 2011 fest. Damit können 606 gewählte Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler in insgesamt 48 Fachkollegien ihre Arbeit aufnehmen. Die neu gewählten Fachkollegien konstituieren sich ab März 2012 und lösen damit die bislang amtierenden Kollegien ab. www.dfg.de/dfg_profil/gremien/fachkollegien/index.jsp

Die konstituierende Sitzung des Fachforums Chemie hat am 29. und 30. März 2012 stattgefunden. Die Theoretische Chemie wird im Fachforum nun von den Herren Grimme, Klopper, Marx, Neugebauer und Seifert vertreten¹.

Elektronische Antragstellung ab dem 1. Februar 2012

Seit Mitte Oktober 2011 ermöglicht das System elan die elektronische Antragstellung auch in der Sachbeihilfe. Seit dem 1. Februar 2012 nimmt die DFG, dort, wo eine Antragstellung über das elan-Portal möglich ist (zurzeit Forschungsstipendien und Neu- und Fortsetzungsanträge in der Sachbeihilfe), Anträge nur

noch in dieser Form entgegen. Zum System „elan“ www.dfg.de/foerderung/antragstellung/elan/index.html

Terminänderung für Anträge auf Einrichtung eines Schwerpunktprogramms

Anträge auf Einrichtung neuer Schwerpunktprogramme bei der DFG müssen ab sofort bereits zum 15. Oktober (anstatt wie bisher zum 15. November) in elektronischer Form bei der Geschäftsstelle der DFG vorliegen. Diese Regelung gilt ab dem Jahr 2012. Grund dafür ist ein neuer Tagungsrythmus des Senats der DFG, der einmal pro Jahr über die Themen entscheidet, für die neue Schwerpunktprogramme eingerichtet werden. Bislang tagte der DFG-Senat dazu jeweils im April. Der neue Turnus sieht die Entscheidung über die Schwerpunktprogramme schon im März vor.

Aktuelle Ausschreibung

Information für die Wissenschaft Nr. 13 | 20. März 2012 *Conversion of Renewable Energies to Hydrogen – a Bilateral Chinese-German Call for Proposals* www.dfg.de/foerderung/info_wissenschaft/info_wissenschaft_12_13/index.html

7 Klatsch und Tratsch

Henry F. Schaefer III, *Prof. Dr.*, hat einen Alexander von Humboldt Forschungspreis erhalten und wird in den nächsten drei Jahren jeweils für 2 Monate in der Arbeitsgruppe Ochsenfeld an der LMU München zu Gast sein. Sein erster Aufenthalt in Deutschland wird von Anfang Juni bis Anfang August 2012 sein.

Reinhold Fink, *Prof. Dr.*, besetzt zum Wintersemester 2011/2012 eine W3-Professur für Computational Physical Chemistry an der Eberhard Karls Universität Tübingen.

Leticia González, *Prof. Dr.*, Institut für Physikalische Chemie der Universität Jena hat einen Ruf auf eine Professur für Theoretische Chemie an der Universität Wien angenommen und das Bleibeangebot der Universität Jena abgelehnt.

Marek Sierka, *Prof. Dr.*, hat zum 1. Januar 2012 einen Ruf an die Friedrich Schiller Universität Jena angenommen. Er besetzt eine Professur für Computational Materials Science im Fachbereich Theoretische Physik.

¹S. Grimme, Fachkollegium Molekülchemie – Organische Molekülchemie; W. Klopper und D. Marx, Fachkollegium Physikalische und Theoretische Chemie – Allgemeine Theoretische Chemie; G. Seifert und J. Neugebauer, Fachkollegium Chemische Festkörper- und Oberflächenforschung – Theorie und Modellierung.