

# 异质结中桥分子电子转移的飞秒激光控制研究<sup>\*</sup>

赵红敏<sup>1)</sup> 王鹿霞<sup>2)†</sup>

1) 北京交通大学理学院物理系, 北京 100044)

2) 北京科技大学应用科学学院物理系, 北京 100083)

(2008 年 7 月 1 日收到, 2008 年 7 月 14 日收到修改稿)

以染料分子通过桥分子吸附在半导体表面所组成的异质结为研究对象, 用一维约化振动模型研究了异质结中桥分子电子转移的飞秒激光优化控制过程, 分别对单个桥分子和两个并列桥分子连接的异质结系统的电子传输及飞秒激光控制做了仔细的计算和讨论, 理论上分析了桥分子的存在对异质结中超快电子转移路径的影响.

关键词: 飞秒激光, 优化控制, 异质结电子转移

PACC: 8253, 3320

## 1. 引言

由于超快光激发及电子转移在染料感光太阳能电池及在催化反应、电化学反应方面的关键作用, 飞秒激光作用下从染料分子到半导体导带的超快电子转移过程受到当前许多理论和实验工作者的关注<sup>[1-5]</sup>. 同时时间分辨的瞬间吸收技术的发展为研究超快激光作用下异质结的电子转移现象提供了重要的实验条件, 从而促进了超快异质结电子转移相关理论的进展<sup>[2,6]</sup>.

在染料分子和半导体组成的异质结中, 染料分子一般是通过某些桥分子吸附在具有多孔结构的半导体表面上, 这些所谓的桥分子一边连接染料分子, 一边象锚一样吸附在半导体表面, 桥分子的存在一方面由于它们分子结构及键长的不同使染料分子与半导体间的电子耦合发生变化, 从而改变它们之间的电子耦合强度, 比如在二萘嵌苯( perylene) 和  $\text{TiO}_2$  所组成的异质结系统中, 用羧基酸分子(  $-\text{COOH}$  ), 丙烯酸分子(  $-(\text{CH}_2)-\text{COOH}$  ), 磷酸分子(  $-\text{P}(\text{O})(\text{OH})_2$  ) 等作为桥分子, 使电荷注入时间从几飞秒到几十飞秒之间变化<sup>[7,8]</sup>; 在另一方面, 桥分子的存在也提供了超快电子转移的路径. 在我们前期工作中曾经用优化控制理论( optimal control theory )<sup>[9-11]</sup>, 以染料分子的电子激发态及振动激发态为目标态, 在

理论上计算了具有特殊频率及脉冲包络线的优化激光脉冲, 在这种特殊脉冲作用下获得目标态的最大产生率<sup>[12]</sup>. 然而在不同的桥分子作用下如何通过优化脉冲来控制电子转移过程, 桥分子的数量及键长如何影响超快电子转移过程, 多个独立的桥分子是否可以提供多条电荷转移路径, 能否通过某种特殊的优化激光脉冲实现电子转移路径的选择等等都是十分有趣的课题.

我们应用一维约化的振动模型<sup>[12]</sup>将具有一个或两个并列桥分子的异质结系统模型化, 并结合优化控制理论选择不同的电子能级作为目标态, 通过求解耦合的微分方程获得目标态的最大产生率, 并找到相应的优化激光脉冲.

## 2. 理论模型及相关公式

在一维约化的振动模型下, 将桥分子包含在内的哈密顿为

$$H(t) = H_{\text{mol-sem}} + H_{\text{field}}, \quad (1)$$

式中右边第一项描述染料分子、桥分子及半导体组成的系统, 后一项为系统与激光场的耦合项. 第一部分的电子哈密顿  $H_{\text{mol-sem}}$  包括染料分子的电子基态  $|\varphi_g\rangle$ , 第一电子激发态  $|\varphi_e\rangle$ . 我们假设这个电子激发态与桥分子的电子态相耦合, 桥分子的电子态用  $|\varphi_{b_i}\rangle$  来表征, 其中角标表示系统内所包含的第  $i$  个

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金(批准号: 10604004)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: luxiaowang@sas.ustb.edu.cn

桥分子,电子受到激发后通过桥分子转移到半导体导带后形成的电离态,我们用波矢  $k$  来标记,因此半导体中的连续态标记为  $|\varphi_k\rangle$ ,这样系统的哈密顿有如下形式:

$$H_{\text{mol-sem}} = \sum_{a=g,e,b_i,k} [E_a + H_a(Q)] |\varphi_a\rangle \langle \varphi_a| + \left( \sum_{k,j} V_{b_j,k} |\varphi_{b_j}\rangle \langle \varphi_k| + \sum_j V_{eb_j} |\varphi_e\rangle \langle \varphi_{b_j}| + \text{h.c.} \right) + \sum_{i \neq j} V_{b_i,b_j} |\varphi_{b_i}\rangle \langle \varphi_{b_j}|, \quad (2)$$

其中  $E_a$  是对应于不同电子态  $\varphi_a$  的能量,导带能用  $E_k = E_c + \hbar\omega_k$  来表示,其中  $E_c$  表示导带底能量,半导体导带中的态密度(DOS)定义为

$$N(\omega) = \sum_k \delta(\omega - \varepsilon_k), \quad (3)$$

其中  $\hbar\omega$  表示半导体导带能量, $\omega$  在  $(0, \omega_{\text{max}})$  内变化,在宽带近似下我们用其平均态密度描述半导体的导带,即  $\bar{N} = N(\omega)$ . 桥分子与分子激发态间的电子耦合用  $V_{eb_j}$  来表示,半导体能带与桥分子之间的电子耦合用  $V_{b_j,k}$  来表示,不同桥分子之间的分子耦合我们用  $V_{b_i,b_j}$  来表示. 相应于每个电子态的振动态哈密顿表示为  $H_a(Q)$ ,其本征函数我们用  $\chi_{aM}$  来表示,本征值为  $\hbar\omega_M$ ,  $M$  为振动量子数. 我们假设每个能级的势能面  $U_a(q)$  具有相同的振动频率  $\omega_{\text{vib}}$ ,电子在半导体导带中的势能面对应于分子电离态的势能面,在我们的计算中只考虑一个振动模,因此所有的计算在单振动坐标  $Q$  中进行,振动哈密顿  $H_a(Q)$  具有如下形式:

$$H_a(Q) = \frac{\hbar\omega_{\text{vib}}}{4} (Q - Q^{(a)})^2, \quad (4)$$

其中  $a = g, e, b_i, k$ .

染料分子、桥分子与半导体组成的系统与激光场的耦合项有如下形式:

$$H_{\text{field}}(t) = -E(t)\hat{\mu}, \quad (5)$$

这里忽略了从分子基态到半导体导带的直接激发,只考虑光激发发生在分子的基态和分子的第一激发态之间,即

$$\hat{\mu} = \mathbf{d}_{eg} |\varphi_e\rangle \langle \varphi_g| + \text{h.c.}, \quad (6)$$

其中  $\mathbf{d}_{eg}$  为迁移偶极矩矩阵元.

分子的波函数可以按照非绝热的电子振动态展开,具有如下形式:

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{aM} C_{aM}(t) |\chi_{aM}\rangle |\varphi_a\rangle. \quad (7)$$

对于半导体中的连续态,与能量有关的展开系数  $C_{kM}(t)$  所对应的  $C_M(\omega, t)$  可以按照其对应的  $\omega$  进行正交多项式展开,即

$$C_M(\omega, t) = \sum_r u_r(\omega) C_M^{(r)}(t), \quad (8)$$

$r$  的取值范围从  $0-\infty$ ,  $u_r(\omega)$  在频率范围  $(0, \omega_{\text{max}})$  内形成一实正交系,进行这样的展开后需要求解的耦合的微分方程的数目大大减少,提高计算效率,在这样的展开下我们得到以下耦合的运动方程(这里  $\Omega_{ab}(t) = E(t)\mathbf{d}_{ab}/\hbar$  且分子基态的能量  $E_g = 0$ ):

$$\frac{\partial}{\partial t} C_{gM}(t) = -i\omega_M C_{gM}(t) + i\Omega_{ge}(t) \sum_N \chi_{gM} |\chi_{eN}\rangle C_{eN}(t), \quad (9)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} C_{eM}(t) = -(\omega_{eg} + \omega_M) C_{eM}(t) + i\Omega_{eg}(t) \sum_N \chi_{eM} |\chi_{gN}\rangle C_{gN}(t) - i \sum_{Nj} \frac{V_{eb_j}}{\hbar} \chi_{eM} |\chi_{b_jN}\rangle C_{b_jN}(t), \quad (10)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} C_{b_iM}(t) = -(\omega_{b_i g} + \omega_M) C_{b_iM}(t) - i \frac{V_{eb_i}}{\hbar} \sum_N \chi_{b_iM} |\chi_{eN}\rangle C_{eN}(t) - i \frac{V_{b_i, \text{ion}}}{\hbar} \bar{N} \sqrt{\omega_{\text{max}}} \times \sum_N \chi_{b_iN} |\chi_{\text{ion}N}\rangle C_N^{(0)}(t) - i \frac{V_{b_i,b_j}}{\hbar} \sum_{Nj \neq i} \chi_{b_iM} |\chi_{b_jN}\rangle C_{b_jN}(t), \quad (11)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} C_M^{(r)}(t) = -i \left( \omega_{\text{ion}g} + \frac{\omega_{\text{max}}}{2} + \omega_M \right) C_M^{(r)}(t) - i \frac{\omega_{\text{max}}}{2} (\alpha_r C_M^{(r-1)}(t) + \alpha_{r+1} C_M^{(r+1)}(t)) - i \delta_{r,0} \sqrt{\omega_{\text{max}}} \sum_{Nj} \frac{V_{b_j, \text{ion}}}{\hbar} \times \chi_{\text{ion}M} |\chi_{b_jN}\rangle C_{b_jN}(t). \quad (12)$$

在具体的计算中,正交系  $u_r(\omega)$  化为勒让德多项式,根据勒让德多项式的递推及正交及递推性质得到上面的方程<sup>[4,12-14]</sup>,关于正交多项式的展开的具体形式详见文献<sup>[12]</sup>,这里不再赘述,需要说明的是在上面的耦合方程中

$$\alpha_r = \sqrt{\frac{r^2}{4r^2 - 1}}.$$

若给定一个激光脉冲,并假设初始条件为  $C_{aM} = \delta_{aM, g_0}$  (相应于绝对零度的情况),求解耦合方程(9)–(12),我们会得到染料分子各能级、桥分子和电离态随时间变化的电子分布

$$P_g(t) = \sum_M |C_{gM}(t)|^2, \quad (13)$$

$$P_e(t) = \sum_M |C_{eM}(t)|^2, \quad (14)$$

$$P_{b_i}(t) = \sum_M |C_{b_i M}(t)|^2, \quad (15)$$

$$P_{ion}(t) = 1 - P_g(t) - P_e(t) - \sum_i P_{b_i}(t). \quad (16)$$

在本文的计算中,在给定目标态的前提下我们用优化控制理论计算实现目标态最大化的优化激光场,所谓的优化控制理论是20世纪90年代由Rabitz及其合作者发展起来的用最小能量控制微观体系的理论方法<sup>[9–11]</sup>.就激光束控制分子的动力学过程而言,首先需要在某个时刻  $t_f$  设定一个特定的目标态  $|\Psi_{tar}$ ,在  $t_0$  时刻到  $t_f$  时刻内激光场对分子发生作用.优化控制理论从数学上来讲是在能量有限的前提下实现激光场引导的波函数  $|\Psi(t)$  在  $t_f$  时刻与目标态波函数的最大交叠,这样其优化激光场可以由以下函数的极值得到<sup>[15–17]</sup>

$$J(t_f; E) = |\langle \Psi_{tar} | \Psi(t_f) \rangle|^2 - \frac{1}{2} \int_{t_0}^{t_f} dt \lambda(t) E^2(t), \quad (17)$$

式中  $|\langle \Psi_{tar} | \Psi(t_f) \rangle|^2$  为目标态的产生率,  $\lambda$  为补偿函数,在求解函数(17)的极值时,给定补偿函数以确定所需的能量.从(17)式中可以看到  $\lambda$  增加激光场强度减小.在计算中我们令  $\lambda(t) = \lambda_0 \sin^{-2}(\pi t/t_f)$ ,使激光场光滑地开启和关闭<sup>[10,11]</sup>.由  $\delta J = 0$  我们得到以下形式的优化激光场

$$E(t) = -\frac{2}{\hbar \lambda(t)} \text{Im} \{ \langle \Psi(t_f) | \Psi_{tar} \rangle \times \langle \Psi(t) | \hat{\mu} | \Psi(t) \rangle \}. \quad (18)$$

在计算中,我们采用正向传播和反向传播的有效的迭代机制来实现优化激光场.正向传播中从  $t_0$  到  $t_f$ ,波函数为  $|\Psi(t)$ ,反向传播从  $t_f$  到  $t_0$ ,波函数为  $|\Theta(t)$ .首先,给一个任意场,波函数从初始条件在给定任意场的作用下从  $t_0$  传播到  $t_f$ ,从而得到  $|\Psi^{(0)}(t)$ ,将  $|\Psi^{(0)}(t)$  和  $|\Psi(t_f)$  代入方程(18),用(18)式计算所得的激光场,波函数  $|\Theta^{(0)}(t)$  从  $t_f$  以初始条件  $|\Psi_{tar}$  反向传播到  $t_0$ .然后  $|\Theta^{(0)}(t)$  用

来计算  $|\Psi^{(1)}(t)$  和下一次迭代的优化激光场,如此循环,当连续两次循环得到的激光场相对差  $(E^{(n+1)} - E^n)/E^n < 10^{-5}$  时,我们就认为得到了所谓的优化控制激光场.

## 3. 结果和讨论

### 3.1. 系统的物理参数选择

在我们的计算中采用了适合于 perylene-TiO<sub>2</sub> 系统的参数<sup>[5,8]</sup>.将染料分子的电子基态能级看作参考能级,第一激发态的能级为 2 eV,设 TiO<sub>2</sub> 的导带底能级在 1 eV 左右,其导带宽度为 2 eV.在单振动坐标模型下,二萘嵌苯的振动能  $\hbar\omega_{vib}$  可以认为在 0.1 eV 左右<sup>[2,3,12]</sup>,因此我们取  $\hbar\omega_{vib} = 0.1$  eV.从染料分子的激发态到基态的复合能  $\lambda_{eg} = \hbar\omega_{vib} g_{eg}^2$ ,桥分子到染料分子的复合能  $\lambda_{be} = \hbar\omega_{vib} g_{be}^2$  以及从电离态到第一激发态的复合能  $\lambda_{ionb} = \hbar\omega_{vib} g_{ionb}^2$  也为 0.1 eV ( $g_{eg}$ ,  $g_{be}$  及  $g_{ionb}$  为无量纲的电子振动耦合常数).在文献[18]中报道了二萘嵌苯的跃迁偶极矩阵元为 2.4 D,在本文的计算中我们采用  $d_{eg} = 3$  D.在这里我们假设有一个或两个桥分子平行地连接染料分子和半导体,只考虑桥分子与分子激发态的耦合和半导体导带与桥分子的耦合,并假定这两部分的耦合数值相等,同时忽略桥分子之间的耦合,即  $V_{cb_i} = V_{b_i ion} = V$ ,且  $V_{b_i b_j} = 0$ .在我们的计算中发现中间态注入时电子转移效率最高,因此我们的讨论只限于中间态注入情况,即半导体导带底能级比染料分子的激发态能级低 1 eV.

### 3.2. 极限情况下含有桥分子的异质结系统的动力学

在这一部分中我们讨论在极限情况下异质结系统的动力学过程,作为后面的优化控制场计算的数值参考.一个极限是在低温情况下,染料分子只有其电子基态的振动基态上有电子占据,另一个极限是我们取超短激光场的极限情况,即在函数激光场作用下,忽略非-Condon 效应(non-Condon effects).在这两个极限情况下系统的初始条件为  $C_{aM}(0) = \delta_{a, e}$ ,  $\chi_{eM} | \chi_{g_0}$ , 分子基态的电子占据  $P_g(t) = 0$ .

图 1 给出在极限情况下电子占据态随时间的变

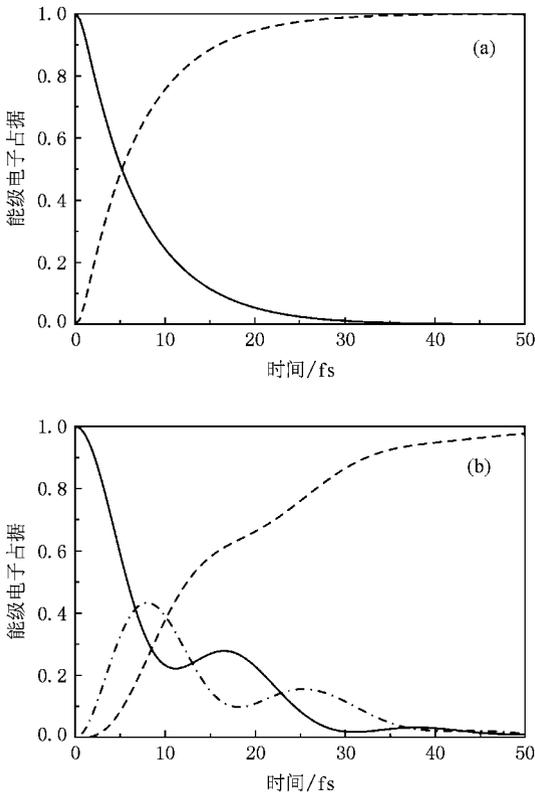


图1 极限情况下异质结系统的各个电子能级占据的时间演变曲线 实线对应于  $P_e(t)$  (14式), 虚线对应于  $P_{ion}$  (16式), 点划线对应于  $P_b$  (15式). (a)染料分子与半导体组成的异质结系统 (b)染料分子桥分子及半导体组成的异质结系统

化规律. 其中(a)图为没有桥分子的异质结系统, 我们看到的在中间态注入时, 由于电子的超快传输过程, 分子激发态上的电子占据呈指数下降趋势. 从分子激发态到半导体导带的电子转移过程是单向的. 超快电子转移时间大约为 30 fs. 桥分子作为超快电子转移的中介分子, 使电子的逆传输成为可能, 这样使电子传输效率降低, 染料分子激发态上的电子占据呈现衰减-回流-再衰减的过程, 相应地桥分子上的电子占据随着激发态的动力学过程也出现聚集-流失-聚集-流失的过程, 在 50 fs 时间内激发态上的电子通过桥分子全部转移至半导体导带中(如图 1(b)所示), 在计算中我们取各部分的耦合强度均相等并保证异质结各部分较强的电子耦合.

### 3.3. 超快激光控制的桥分子态电子转移

在这一部分中, 我们首先考虑在包含单个桥分子的异质结系统中以桥分子的电子态为目标态  $|\Psi_{tar}\rangle = |\varphi_b\rangle$ , 并设优化控制时间  $t_f$  为 100 fs. 我

们发现在强耦合系统中, 一方面从分子激发态到桥分子具有较高的电子传输效率, 另一方面, 桥分子到半导体导带也具有较高的电子转移效率, 由于电子转移到半导体导带的不可逆性, 较难实现对桥分子电子占据态的优化控制. 如图 2 所示, 在电子耦合  $V_{eb_i} = V_{b_i ion} = V = 0.1$  eV 的系统中, 目标态的产生率为 0.23. 我们计算了在不同耦合强度下目标态的产生率, 发现在  $V = 0.02$  eV 时目标态的产生率达到最大, 数值达到 0.73, 说明在这个耦合强度下在  $t_f = 100$  fs 时刻从桥分子到半导体导带的电子注入过程与桥分子到分子激发态的电荷转移过程同时受到有效的抑制, 桥分子上有最多的电子聚集.

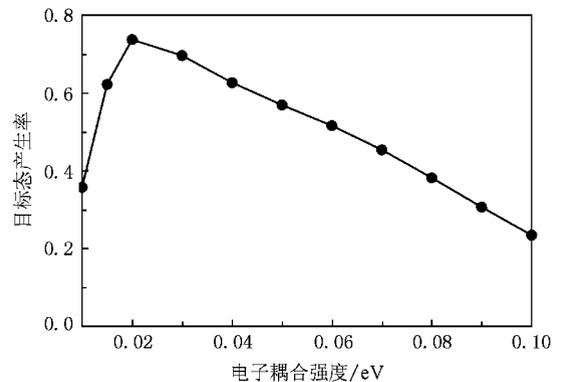


图2 优化激光控制的单桥分子态目标态的产生率在  $t_f = 100$  fs 时刻与电子耦合强度的关系曲线

在接下来的讨论中, 考虑这样一个系统: 在染料分子和半导体之间有两个并列的桥分子, 在我们考虑的对称结构中即两个桥分子与半导体导带的耦合和分子激发态的耦合均相等, 取耦合强度  $V = 0.05$  eV. 在这种结构中, 我们选取其中一个桥分子态为目标态, 目标时间  $t_f = 100$  fs. 图 3 为在这个目标态作用下各个电子能级在 140 fs 内随时间的演变情况. 从图 3 中我们看到由于对称结构的限制, 两个桥分子在随时间演变的过程中保持相同的电子占据, 在 40—90 fs 的时间范围内优化激光场激发了分子基态上的大部分电子, 在 100 fs 时桥分子上的电子占据达到最大, 电子到半导体导带的注入过程和到分子激发态的回流过程同时受到抑制. 在到达目标时间  $t_f$  以后的 40 fs 时间内桥分子上的部分电子注入到半导体导带中, 部分与分子激发态能级发生电子交换.

在我们考虑的非对称结构中包含两个桥分子, 其中桥分子 1 与染料分子和半导体的电子耦合较

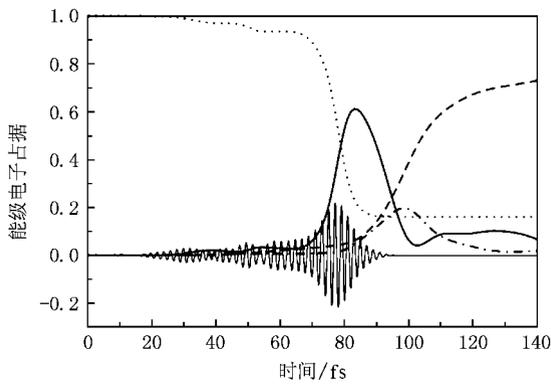


图 3 优化激光控制的对称结构桥分子态的各个电子能级的电子占据随时间的演变曲线. 点线对应于  $P_g(t)$  (13 式), 实线对应于  $P_g(t)$  (14 式), 虚线应于  $P_{ion}(t)$  (16 式), 点划线对应于  $P_{b_1}(t)$  (15 式). 细实线为相应的优化激光场

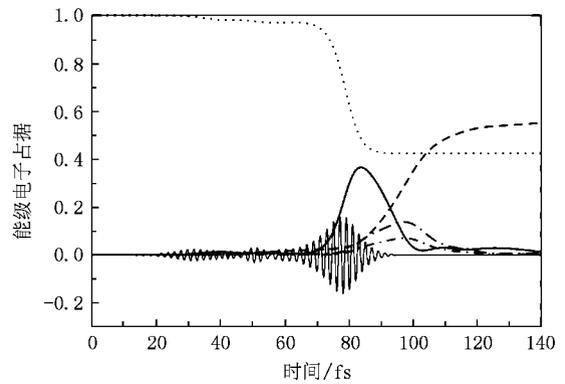


图 4 优化激光控制的非对称结构桥分子态的各个电子能级的电子占据随时间的演变曲线. 点线对应于  $P_g(t)$  (13 式), 实线对应于  $P_g(t)$  (14 式), 虚线应于  $P_{ion}(t)$  (16 式), 长点划线对应于  $P_{b_1}(t)$ , 短点划线对应于  $P_{b_2}(t)$  (15 式). 细实线为相应的优化激光场

强. 桥分子 2 与染料分子和半导体电子耦合较弱. 我们的模拟表明若两个桥分子的电子耦合强度相差较大 (如大于  $0.04 \text{ eV}$ ), 对弱耦合的桥分子为目标态的优化控制过程无法实现. 若两个桥分子的电子耦合强度相差较小则对弱耦合的桥分子为目标态的优化控制所得的目标态的产生率与对称结构相比 (如  $V_{b_1} = V_{b_2} = 0.05 \text{ eV}$ ) 要小得多. 图 4 为非对称结构中对桥分子 2 的优化控制, 这里 ( $V_{b_1} = 0.07 \text{ eV}, V_{b_2} = 0.05 \text{ eV}$ ), 其能级的电子占据随时间的演变过程说明, 这个系统中虽然桥分子 1 的电子耦合强度比图 3 中桥 1 分子的耦合强度强, 在优化控制作用下, 非对称结构的电子传输效率远远小于对称结构 (目标态产生率为  $0.07$ , 而对称结构为  $0.19$ ), 说明在异质结结构中, 对耦合强度弱的桥分子态的优化控制可以有效地抑制电子到半导体导带的传输速度及效率, 而优化控制激光场的强度及脉冲形状与对称结构相应的优化场相差不多.

## 4. 结 论

本文以染料分子、桥分子及半导体所组成的异质结系统为研究对象, 将约化的一维振动模型与优化控制理论相结合, 研究了包含桥分子的异质结系统的动力学过程. 我们发现桥分子的存在使电子回流到分子激发态的输运过程成为可能, 在对桥分子的电子态为目标态的优化控制中, 这个电子回流的输运过程得到抑制. 另外对具有两个平行桥分子的异质结系统的计算发现, 对称结构下对桥分子的优化控制与非对称结构中对弱耦合桥分子的优化控制相比较对称结构中目标态的产生率较高, 电子注入到半导体导带的效率较高, 而对非对称结构来说实现弱耦合桥分子态的优化控制同时抑制了从染料分子激发态到桥分子的电子输运过程和桥分子到半导体导带的电子注入过程.

- [ 1 ] Nazeerudin M K, Kay A, Rodicio I, Humphrey-Baker R, Muller E, Liska P, Vlachopoulos N, Gratzel M 1993 *J. Am. Chem. Soc.* **115** 6382
- [ 2 ] Zimmerman C, Willing F, Ramakrishna S, Burfeindt B, Pettinger B, Eichberger R, Storch W 2001 *J. Phys. Chem. B* **105** 9245
- [ 3 ] Ramakrishna S, Willing F, May V 2000 *Phys. Rev. B* **62** R16330
- [ 4 ] Ramakrishna S, Willing F, May V 2002 *Chem. Phys. Lett.* **351** 242
- [ 5 ] Ramakrishna S, Willing F, May V 2001 *J. Chem. Phys.* **115** 2743

- [ 6 ] Burfeindt B, Hammappel T, Storch W, Willing F 1996 *J. Phys. Chem.* **100** 16463
- [ 7 ] Wang L, Ernstorfer R, Willing F, May V 2005 *J. Phys. Chem. B* **109** 9589
- [ 8 ] Wang L, Willing F, May V 2006 *J. Chem. Phys.* **124** 14712
- [ 9 ] Judson R S, Rabitz H 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 1500
- [ 10 ] Zhu W, Rabitz H 1998 *J. Chem. Phys.* **109** 385
- [ 11 ] Zhu W, Botina J, Rabitz H 1998 *J. Chem. Phys.* **108** 1953
- [ 12 ] Wang L, May V 2004 *J. Chem. Phys.* **121** 8039

- [ 13 ] Ramakrishna S , Willing F , May V , Knorr A 2003 *J. Phys. Chem. B* **107** 607
- [ 14 ] Seel M , Domcke W 1991 *J. Chem. Phys.* **95** 7806
- [ 15 ] Mancal T , May V 2001 *Europ. Phys. J. D* **14** 173
- [ 16 ] Pierce A P , Dahleh M A , Rabitz H 1998 *Phys. Rev. A* **37** 4950
- [ 17 ] Shi S , Woody A , Rabitz H 1988 *J. Chem. Phys.* **88** 6870
- [ 18 ] Halasinski T M , Weisman J L , Ruitkamp R , Lee T J , Salama F , Head-Gordon M 2003 *J. Phys. Chem. A* **107** 3660

## Laser pulse control of bridge state electron transfer in heterogeneous structures<sup>\*</sup>

Zhao Hong-Min<sup>1)</sup> Wang Lu-Xia<sup>2)†</sup>

<sup>1</sup> *Department of Physics , School of Science , Beijing Jiaotong University , Beijing 100044 , China )*

<sup>2</sup> *Department of Physics , School of Applied Science , University of Science and Technology Beijing , Beijing 100083 , China )*

( Received 1 July 2008 ; revised manuscript received 14 July 2008 )

### Abstract

Combined with one-dimensional reduced vibrational model and optimal control theory , the heterogeneous electron transfer in bridge mediated systems is theoretically studied. Laser pulse control of heterogeneous system with single bridge and double parallel bridges are simulated , the the dynamic process and the optimal pulse are analysed. The influence of bridge molecules on the ultrafast electron transfer path is also discussed.

**Keywords** : femtosecond laser pulse , optimal control , ultrafast electron transfer

**PACC** : 8253 , 3320

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10604004 ).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail : luxiaawang@sas.ustb.edu.cn