

## Zusammenfassung zur Masterarbeit "Tight-Binding Analysis of High-Harmonic Generation in Molecular Films"

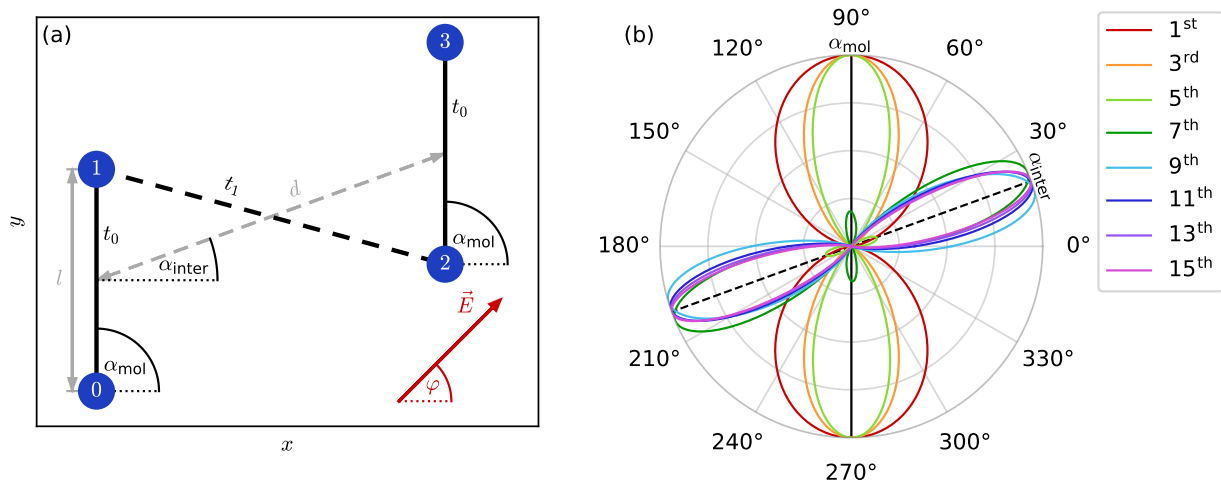


Abbildung 1: (a) Skizze des Modellsystems. Die Positionen 0 und 1 (blaue Kreise) simulieren ein Molekül mit der intramolekularen Kopplung  $t_0$ . Gleiches gilt für die Positionen 2 und 3. Durch die Wechselwirkung  $t_1$  sind die beiden Modellmoleküle schwach miteinander gekoppelt. Die Abstände  $l$  und  $d$  sowie die Winkel  $\alpha_{\text{mol}}$  und  $\alpha_{\text{inter}}$  bestimmen die Geometrie des Systems. Durch einen Laserpuls mit dem elektrischen Feld  $\vec{E}$  wird das System angeregt. (b) Normierte Intensität verschiedener Harmonischen-Ordnungen als Funktion des Laserpolarisationswinkels  $\varphi$  für  $t_1 = 0,02 t_0$ .

Wenn man ein Material mit einem intensiven Laserpuls bestrahlt, werden die Elektronen darin beschleunigt, was dazu führt, dass das Material Licht aussendet, welches vielfach höhere Frequenzen beinhalten kann als das Laserlicht. Dieser Prozess wird als Hohen-Harmonischen-Erzeugung (engl.: high-harmonic generation, kurz HHG) bezeichnet. HHG ist u.a. deshalb interessant, weil durch die Analyse der emittierten Hohen-Harmonischen-Strahlung Rückschlüsse auf Eigenschaften des bestrahlten Materials gezogen werden können. So wurde HHG in den letzten Jahrzehnten schon in vielen verschiedenen Materialklassen erforscht. Kürzlich konnte an unserem Institut die Erzeugung hoher Harmonischer auch in dünnen organischen Molekülkristallen gemessen werden. Dabei wurde herausgefunden, dass die emittierten hohen Harmonischen besonders intensiv sind, wenn das elektrische Feld des Laserpulses in eine Richtung polarisiert ist, die benachbarte Moleküle im Kristall verbindet.

Um die relevanten Mechanismen und Abhängigkeiten von HHG in solchen molekularen Filmen besser zu verstehen, habe ich im Zuge meiner Masterarbeit ein vereinfachtes, aber flexibles Modell im Tight-Binding-Formalismus entwickelt. Das grundlegende Modellsystem besteht aus zwei schwach gekoppelten Molekülen, wie es in Abb. 1(a) dargestellt ist. Für dieses sowie für ein Kristallmodell wurde die Abhängigkeit der Hohen-Harmonischen-Ausbeute von der Laserpolarisationsrichtung und verschiedenen anderen Parametern in der Arbeit untersucht. Wie in Abb. 1(b) gezeigt ist, wird für das abgebildete Modell die Intensität der Harmonischen-Ordnungen 1 bis 5, d.h. das emittierte Licht mit verhältnismäßig kleinen Frequenzen, maximal, wenn der Laserpuls parallel zu den Molekülachsen polarisiert ist (markiert durch die durchgezogene schwarze Linie). Die höheren Harmonischen, hier jene, die mindestens um den Faktor 7 höher sind als die Laserfrequenz, werden hingegen am stärksten emittiert, wenn die Laserpolarisationsrichtung in etwa die Mittelpunkte der beiden Moleküle verbindet (gestrichelte schwarze Linie), wie es auch in den experimentellen Ergebnissen gesehen wurde. Die weiterführende Tight-Binding-Analyse hat u.a. offenbart, dass sich dieser Wechsel des maximierenden Polarisationswinkels von der molekularen zur intermolekularen Richtung zu höheren Harmonischen-Ordnungen verschiebt, wenn die Stärke der intermolekularen Kopplung reduziert wird. Die Ergebnisse der Arbeit legen damit nahe, dass polarisationsabhängige Hohen-Harmonischen-Messungen genutzt werden könnten, um die intermolekulare Kopplungsstärke in molekularen Filmen zu bestimmen.