

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät

Institut für Physik

Fachgebiet: Physik

Betreuer: Prof. Dr. Tobias Korn

Michael Kempf

(e-mail: m.kempf+promo@kempfco.de)

Insights into optical spectroscopy of 2D materials

Englische Zusammenfassung

In the framework of this work, numerous insights into the field of two-dimensional (2D) materials, in particular transition metal dichalcogenides (TMDCs) and perovskites, were obtained. Using second harmonic generation, the crystallographic orientations of TMDC homo- and heterobilayers were determined and utilized for targeted heterostructures production. In addition, low-frequency Raman spectroscopy was established as an efficient method to identify atomic reconstruction as well as the twist angle for moiré lattices. Furthermore, time-resolved photoluminescence measurements on inter-layer excitons in TMDC-HS revealed that the twist angle in heterostructures at 0° and 60° (R- and H-type) has a pronounced impact on spin polarization dynamics and the effective g-factor. Moreover, a time-resolved two-color pump-probe setup tailored for 2D materials was developed, optimized, and validated through various experiments on molybdenum disulfide monolayers. Using this setup, layered 2D perovskites of the type butylammonium methylammonium lead iodide ((BA)(MA)PbI) were investigated by means of differential reflectance and Kerr rotation spectroscopy with respect to their spin polarization dynamics. These measurements demonstrated that in this material system the carrier lifetime exceeds the spin polarization lifetime by several orders of magnitude, thereby explaining the observed absence of a stationary spin polarization.

Deutsche Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zahlreiche Erkenntnisse im Bereich zweidimensionaler (2D) Materialien, insbesondere Übergangsmetall-dichalkogenide (ÜMDs) und Perowskite, gewonnen. So wurde mittels Frequenzverdopplung die kristallographische Orientierungen in ÜMD-Homo- und Heterobilagen untersucht und dies zur gezielten Heterostruktur (HS)-Herstellung verwendet. Weiterführend wurde mit niederfrequenter Raman-Spektroskopie eine effiziente Methode aufgezeigt, um atomare Rekonstruktion und bei Moiré-Gittern den Verdrehwinkel zu identifizieren. Zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen an Interlagen-Exzitonen in ÜMD-HS zeigten zudem, dass der Verdrehwinkel in Heterostrukturen bei 0° und 60° (R- bzw. H-Typ) einen ausgeprägten Einfluss auf die Spinpolarisationsdynamik und den effektiven g-Faktor hat. Darüber hinaus wurde ein zeitaufgelöster zwei-Farben-Pump-Probe-Messaufbau für 2D-Materialien entwickelt, optimiert und durch verschiedene Experimente an Molybdändisulfid-Monolagen validiert. Abschließend konnten mit diesem Aufbau geschichtete 2D-Perowskite vom Typ Butylammonium-Methylammonium-Blei-Iodid ((BA)(MA)PbI) mittels differentieller Reflexion und Kerr-Rotations-Spektroskopie hinsichtlich ihrer Spinpolarisations- und Lebensdauerdynamik untersucht werden. Dabei zeigte sich, dass in diesem Material die Ladungsträgerlebensdauer um Größenordnungen länger ist als die Spinpolarisationslebensdauer, was das ebenfalls beobachtete Fehlen einer stationären Spinpolarisation verständlich macht.