



Summary in German

Optische Charakterisierungstechniken als ultraempfindliche und zerstörungsfreie Werkzeuge, die den Einfluss der lokalen Struktur auf die optischen Eigenschaften von zweidimensionalen Halbleiterschichten aufzeigen, haben große Aufmerksamkeit erregt. In dieser Arbeit wird nichtlineare optische Mikroskopie in Kombination mit Raman-Mikroskopie verwendet, um die strukturellen Eigenschaften wie etwa strukturelle Unregelmäßigkeiten, kristalline Orientierung, strukturelle Symmetrie sowie molekulare Orientierung von Schichtmaterialien zu charakterisieren und zu verstehen.

Zunächst wird durch die Verwendung von konfokaler Rastermikroskopie in Verbindung mit einem gepulsten Femtosekundenlaser eine effiziente Emission der ersten Oberschwingung (SHG) an den Kanten einzelner Schichten von Wolframdisulfid-Flocken (WS_2) deutlich beobachtet, was auf das Vorhandensein von gebrochener Translationssymmetrie und mehr Strukturfehlern an den Rändern zurückzuführen ist. Interessanterweise zeigt sich die durch zwei Photonen induzierte Photolumineszenz (2PPL) bei Raumtemperatur an den Flockenrändern am schwächsten, was eine Antikorrelation mit dem SHG-Signal in der Einzelschicht von WS_2 aufweist. Die erhaltenen Ergebnisse sind wahrscheinlich auf das Vorhandensein elektronischer Zustände als Zwischenniveaus in der Bandlücke zwischen den Valenz- und Leitungsbändern an den Flockenrändern zurückzuführen. Außerdem nimmt die SHG-Intensität mit zunehmender Schichtdicke zu, während das optische 2PPL-Signal nur in der Einzelschicht von WS_2 sichtbar ist. Das polarisationsabhängige SHG-Signal zeigt ein sechsfaches Rotationsmuster, was auf die dreifache Rotationssymmetrie der WS_2 -Flocke hinweist.

Anschließend werden die strukturellen Unregelmäßigkeitseigenschaften von atomar dünnen Molybdändiselenid (MoSe_2)-Flocken durch SHG- und 2PPL-Signale weiter untersucht. Die 2PPL-Peaks bei $\sim 2,30$ eV und $\sim 2,38$ eV konnten den A' -Exziton- bzw. B' -

Exziton-Übergängen der MoSe₂-Flocke zugeordnet werden. Die Kristallorientierungen von diskreten MoSe₂-Flocken werden mit der polarisierten SHG-Bildgebung und der winkelabhängigen SHG-Spektroskopie bestimmt. Wir beobachteten die Unterschiede im Winkel 3θ , der als Winkel zwischen dem erzeugten elektrischen SHG-Feld und dem elektrischen Feld des Lasers definiert ist, was experimentell die unterschiedlichen Kristallorientierungen diskreter MoSe₂-Flocken anzeigt. Darüber hinaus ist das starke SHG-Signal an den Korngrenzen und Kanten innerhalb einer einzelnen MoSe₂-Flocke deutlich sichtbar.

Die Verwendung von konfokaler Mikroskopie in Kombination mit Lasermoden höherer Ordnung zur Raman-Verstärkung auf MoSe₂-Flocken durch Verwendung von Kupferphthalocyanin (CuPc)-Molekülen als Raman-aktive Substanz wird demonstriert. Sowohl die Photolumineszenz- als auch die SHG-Spektroskopie werden verwendet, um die lokalen strukturellen Eigenschaften der MoSe₂-Flocke aufzudecken. Die Raman-Verstärkung auf einer MoSe₂-Einzelschicht bei einer azimuthal polarisierten Anregung ist größer als die Verstärkung bei einer radial polarisierten Anregung. Dieses Ergebnis weist darauf hin, dass die face-on-orientierten CuPc-Moleküle durch den Ladungstransfer im Grundzustand und die Dipol-Dipol-Wechselwirkung stark mit der MoSe₂-Einzelschicht wechselwirken können. Darüber hinaus zeigen die Raman-Streuungskarten auf der unregelmäßigen MoSe₂-Oberfläche eine gute Korrelation mit den SHG- und PL-Bildern, was auf die Beziehung zwischen lokaler Struktur und optischen Eigenschaften der MoSe₂-Flocke hindeutet.

Schließlich wird eine k-Raum-Bildgebungsmikroskopie zum Untersuchen der Winkelemissionsmuster basierend auf der konfokalen Mikroskopie implementiert, die mit einem gepulsten Femtosekundenlaser gekoppelt ist. Die Probenort- und Dickenabhängigkeiten der Emissionsmuster von 2PPL-Signalen, die von einem einkristallinen DH-P-TTA-Molekülfilm ausgehen, werden demonstriert. In Kombination mit berechneten Emissionsmustern wurde die mögliche molekulare Orientierung innerhalb des DH-P-TTA-Films diskutiert. Auf dem Film werden zwei 2PPL-Peakmaxima unterschieden, die bei ~516 nm und ~552 nm liegen. Wir beobachten das anisotrope Emissionsmuster auf dem ultradünnen Film, was darauf hindeutet, dass die Moleküle

einen Neigungswinkel einnehmen und innerhalb einer Domäne einen hohen Ordnungsgrad aufweisen. Darüber hinaus wird auch eine starke Korrelation zwischen dem erzeugten 2PPL-Signal und der Schichtdicke des DH-P-TTA-Films demonstriert. Die nahezu isotropen Strahlungsmuster werden auf den dicken Filmen mit einer Dicke von ~33.0 nm und ~58.18 nm sichtbar gemacht, was auf die vertikale Ausrichtung der DH-P-TTA-Moleküle in den Filmen zurückzuführen ist.