

Abstract

Recent advances in thinning down semiconductors to the limit of a single monolayer introduced the vastly growing research field of two-dimensional crystals including monolayers of semiconducting transition metal dichalcogenides (TMDCs). Monolayer TMDCs combine two-dimensional confinement with reduced dielectric screening from the environment. This leads to strong attractive Coulomb interactions between electrons and holes which tightly bind together as excitons upon optical excitation. The exceptionally strong excitonic effects dominate the optical properties of monolayer TMDCs near the band gap and constitute an ideal platform to study fascinating many-body physics of excitonic nonlinearities.

In this thesis, a theoretical formalism in a naturally adapted basis of excitons is developed to efficiently describe the excitonic optical response of monolayer TMDCs. In the weakly nonlinear coherent regime, the excitonic description is characterized by excitons and quantum superpositions of two excitons forming bound two-exciton states, so-called biexcitons, as well as associated exciton-exciton scattering continua. The developed theory is applied to investigate the nonlinear optical response of monolayer TMDCs governed by excitons. Progressively increasing the optical excitation power induces biexciton resonances and an optical-power-dependent dephasing, referred to as exciton-scattering-induced dephasing, which originates from quantum interference of excitons with the exciton-exciton scattering continuum. The theoretical evaluations of the exciton-scattering-induced dephasing are in agreement with recent experiments. Subsequently, the coherent exciton kinetics are investigated in ultrafast pump-probe spectroscopy. The contributing signatures are unraveled to interpret experimentally measured pump-probe spectra. In particular, biexcitons and exciton-exciton scattering continua induce an ultrafast intravalley and intervalley mixing of different exciton states. The gained insights are eventually applied to determine the ultrafast exciton formation time in a collaborative experiment-theory comparison. Afterwards, the microscopic theory is extended to study the influence of external magnetic fields on the coherent exciton kinetics by accessing the rich exciton and biexciton fine structures which govern the pump-probe response. Finally, the appearance of time-dependent exciton density oscillations originating from quantum interference of excitons, biexcitons, and the exciton-exciton scattering continuum is demonstrated. The observation of exciton density oscillations is complemented by several control parameters which by a steering of the exciton dynamics enable to enhance or suppress the exciton density oscillations.

All in all, the developed excitonic theory and theoretical findings provide a fundamental understanding to interpret and predict the optical response of monolayer TMDCs and advance the coherent control of widely studied optical spectroscopy. Since the theoretical footing is applicable once the excitonic eigenvalue problem is solved, the results are expected to be adaptable to other inorganic or organic semiconductors dominated by tightly bound excitons as well as quasi-bosonic quantum gases in condensed matter physics. This might inspire further theoretical calculations in other material systems and concurrently serve as a starting point for an experimental engineering.

Zusammenfassung in deutscher Sprache

Die Verfügbarkeit von Halbleitern, welche nur eine einzelne Atomlage dünn sind, begründete das Forschungsgebiet zweidimensionaler Kristalle, welches auch einlagige Übergangsmetallchalkogenide (ÜMDCs) umfasst. Die optischen Eigenschaften von einlagigen ÜMDCs nahe der Bandkante sind bestimmt von Exzitonen, welche Coulomb-gebundene Paare von Elektronen und Löchern darstellen. Starke Coulomb Wechselwirkungen aufgrund der Beschränkung auf zwei Dimensionen sowie verringerte dielektrische Abschirmung durch die Umgebung führen zu außergewöhnlich großen Bindungsenergien von Exzitonen in einlagigen ÜMDCs. Daher stellen einlagige ÜMDCs eine ideale Grundlage zur Untersuchung von faszinierenden Vielteilcheneffekten exzitonischer Nichtlinearitäten dar.

In der vorliegenden Arbeit wird eine Theorie zur effizienten Beschreibung der Exziton-dominierten optischen Reaktion einlagiger ÜMDCs entwickelt. Im schwach nichtlinearen, kohärenten Grenzfall ist die Theorie charakterisiert durch Exzitonen sowie der Quantenüberlagerung von zwei Exzitonen. Letzteres umfasst gebundene Zwei-Exzitonen-Zustände, genannt Biexzitonen, sowie assoziierte Exziton-Exziton-Streukontinuen. Die entwickelte Theorie wird daraufhin zur Untersuchung der optischen Antwort einlagiger ÜMDCs angewandt. Mit steigender optischer Anregungsstärke werden Biexzitonresonanzen induziert und die Quanteninterferenz mit dem Exziton-Exziton-Streukontinuum führt zu Exzitonestreuiндuzierter-Dephasierung. Die theoretisch berechnete Exzitonestreuiндuzierte-Dephasierung steigt linear mit der angeregten Exzitonendichte und ist in Übereinstimmung mit Experimenten. Im Anschluss werden die kohärente Exzitonendynamik in Pump-Probe-Spektroskopie untersucht und die zugrundeliegenden Signaturen erklärt um experimentell gemessene Pump-Probe-Spektren zu verstehen. Die gewonnenen Erkenntnisse ermöglichen außerdem die Bestimmung der ultraschnellen Formationszeit von Exzitonen in einer kollaborativen Studie aus Experimenten und Theorie. Die entwickelte Theorie wird schließlich erweitert um den Einfluss von Magnetfeldern auf die kohärente Exzitonendynamik sowie die Feinstruktur von Exzitonen und Biexzitonen in Pump-Probe-Spektroskopie zu untersuchen. Zuletzt wird das Auftreten von zeitabhängigen kohärenten Oszillationen im reflektierten Lichtfeld aufgrund von Quanteninterferenzen zwischen Exzitonen, Biexzitonen und den Exziton-Exziton-Streukontinuen demonstriert. Die exzitonische Dynamik kann durch zahlreiche Kontrollparameter manipuliert werden, welche ein Verstärken oder Abschwächen der Oszillationen ermöglichen.

Die entwickelte Theorie sowie gewonnene Erkenntnisse liefern das notwendige Wissen zur Interpretation und Voraussage der optischen Reaktion einlagiger ÜMDCs und avancieren die Kontrolle von optischer Spektroskopie. Da die theoretischen Methoden anwendbar sind sobald das exzitonische Eigenwertproblem gelöst wurde, können die erhaltenen Erkenntnisse auch auf andere anorganische oder organische Halbleiter angewandt werden, welche stark gebundene Exzitonen aufweisen, beziehungsweise auch auf quasi-bosonische Gase in der Physik der kondensierten Materie. Die Resultate können somit weitere theoretische und experimentelle Untersuchungen in anderen Materialien anregen und gleichzeitig ein Ausgangspunkt für zukünftige Technologien sein.