

Autoreferat

1. Imię i nazwisko

Maciej Roman Molas

2. Posiadane dyplomy, stopnie naukowe lub artystyczne – z podaniem podmiotu nadającego stopień, roku ich uzyskania oraz tytułu rozprawy doktorskiej.

2014 – **stopień doktora nauk fizycznych w zakresie fizyki**, Uniwersytet Warszawski, Wydział Fizyki, Polska; oraz **stopień doktora Uniwersytetu w Grenoble**, Francja, specjalizacja: fizyka materii skondensowanej i promieniowania. Studia doktoranckie odbyte w ramach umowy o wspólnej opiece doktorskiej (co-tutelle) pomiędzy Uniwersytetem Warszawskim i Uniwersytetem w Grenoble. Rozprawa doktorska pt. „*Multiekscytony w półprzewodnikowych kropkach kwantowych*”. Opiekunowie: dr hab. Adam Babiński oraz dr M. Potemski.

2010 – **tytuł zawodowy magistra fizyki**, Uniwersytet Warszawski, Wydział Fizyki. Specjalizacja: fizyka ciała stałego. Praca magisterska pt. „*Wpływ warunków wzrostu na własności optyczne kropek kwantowych*”. Opiekun: dr hab. Adam Babiński.

3. Informacja o dotychczasowym zatrudnieniu w jednostkach naukowych lub artystycznych.

12.2014 – 10.2017 – **staż podoktorski** w Narodowym Laboratorium Wysokich Pól Magnetycznych w Grenoble, Francja.

11.2017 – 02.2020 – **adiunkt naukowy** na Wydziale Fizyki, Uniwersytet Warszawski, Polska (projekt SONATINA).

03.2020 – obecnie – **adiunkt badawczo-dydaktyczny** na Wydziale Fizyki, Uniwersytet Warszawski, Polska.

4. Omówienie osiągnięć, o których mowa w art. 219 ust. 1 pkt. 2 ustawy z dnia 20 lipca 2018 r. Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce (Dz. U. z 2020 r. poz. 85 z późn. zm.).

Osiągnięcie opisane poniżej jest związane z serią powiązanych tematycznie publikacji dotyczących *kompleksów ekscytonowych w cienkich warstwach półprzewodnikowych dichalkogenów metali przejściowych*.

4.1 Seria publikacji tworzących osiągnięcie naukowe

[MM1] **M. R. Molas**, K. Nogajewski, A. O. Slobodeniuk, J. Binder, M. Bartos, M. Potemski, *The optical response of monolayer, few-layer and bulk tungsten disulfide*, *Nanoscale* **9**, 13128 (2017).

Wykonałem wszystkie pomiary przedstawione w pracy. Przeprowadziłem analizę danych eksperymentalnych, aktywnie uczestniczyłem w dyskusjach oraz pisaniu publikacji.

[MM2] D. Vaclavkova, J. Wyzula, K. Nogajewski, M. Bartos, A. O. Slobodeniuk, C. Faugeras, M. Potemski, **M. R. Molas**, *Singlet and triplet trions in WS₂ monolayer encapsulated in hexagonal boron nitride*, *Nanotechnology* **29**, 325705 (2018).

Wykonałem wszystkie pomiary przedstawione w pracy. Przeprowadziłem analizę danych eksperymentalnych, aktywnie uczestniczyłem w dyskusjach oraz pisaniu publikacji.

[MM3] **M. R. Molas**, K. Nogajewski, M. Potemski, A. Babiński, *Raman scattering excitation spectroscopy of monolayer WS₂*, *Scientific Reports* **7**, 5036 (2017).

Wykonałem wszystkie pomiary przedstawione w pracy. Przeprowadziłem analizę danych eksperymentalnych, aktywnie uczestniczyłem w dyskusjach oraz pisaniu publikacji.

[MM4] **M. R. Molas**, C. Faugeras, A. O. Slobodeniuk, K. Nogajewski, M. Bartos, D. M. Basko, M. Potemski, *Brightening of dark excitons in monolayers of semiconducting transition metal dichalcogenides*, *2D Materials* **4**, 021003 (2017).

Wykonałem wszystkie pomiary przedstawione w pracy. Przeprowadziłem analizę danych eksperymentalnych, aktywnie uczestniczyłem w dyskusjach oraz pisaniu publikacji.

[MM5] **M. R. Molas**, A. O. Slobodeniuk, T. Kazimierczuk, K. Nogajewski, M. Bartos, P. Kapuściński, K. Oreszczuk, K. Watanabe, T. Taniguchi, C. Faugeras, P. Kossacki, D. M. Basko, M. Potemski, *Probing and Manipulating Valley Coherence of Dark Excitons in Monolayer WSe₂*, *Physical Review Letters* **123**, 096803 (2019).

Wykonałem pomiary w polach magnetycznych do 14 T w Narodowym Laboratorium Wysokich Pól Magnetycznych w Grenoble, Francja. Przeprowadziłem analizę danych eksperymentalnych, aktywnie uczestniczyłem w dyskusjach oraz pisaniu publikacji.

[MM6] **M. R. Molas**, A. O. Slobodeniuk, K. Nogajewski, M. Bartos, Ł. Bala, A. Babiński, K. Watanabe, T. Taniguchi, C. Faugeras, M. Potemski, *Energy spectrum of two-dimensional excitons in a nonuniform dielectric medium*, *Physical Review Letters* **123**, 136801 (2019).

Wykonałem wszystkie pomiary przedstawione w pracy. Przeprowadziłem analizę danych eksperymentalnych, aktywnie uczestniczyłem w dyskusjach oraz pisaniu publikacji.

[MM7] **M. R. Molas**, K. Gołasa, Ł. Bala, K. Nogajewski, M. Bartos, M. Potemski, A. Babiński, *Tuning carrier concentration in a superacid treated MoS₂ monolayer*, *Scientific Reports* **9**, 1989 (2019).

Uczestniczyłem w pomiarach przedstawionych w pracy. Przeprowadziłem analizę danych eksperymentalnych, aktywnie uczestniczyłem w dyskusjach oraz pisaniu publikacji.

4.2 Opis osiągnięcia naukowego

Ekscytony w półprzewodnikach są stanami związanymi składającymi się z ujemnie naładowanych elektronów i dodatnio naładowanych dziur, które przyciągane są do siebie siłą kulombowską. Kompleksy ekscytonowe można podzielić na kilka rodzajów, np.: ekscyton neutralny składający się z pary elektron-dziura ($e-h$) lub trion złożony z dwóch nośników o tym samym znaku ładunku i jednego nośnika o przeciwnym znaku ładunku. Ekscytony odpowiadają za odpowiedź elektronową i optyczną wielu półprzewodników. Są one ważne dla kondensacji Bosego-Einsteina, nadciekłości, bezrozproszeniowego przepływu prądu i ekscytonowego spinowego efektu Halla indukowanego światłem, które stanowią kilka przykładów zjawisk zachodzących w półprzewodnikach. Półprzewodnikowe dichalkogenki metali przejściowych (S-TMD) o wzorze MX_2 , gdzie $M=Mo$ lub W i $X=S, Se$ lub Te , to najintensywniej badana grupa dwuwymiarowych (2D) materiałów warstwowych, która w ostatnim czasie przyciągnęła znaczną uwagę naukowców, przede wszystkim w dziedzinie fizyki półprzewodników i nanonauki oraz zastosowań optoelektronicznych. Najbardziej znaną właściwością tych materiałów jest zmiana przerwy energetycznej ze skośnej do prostej przy redukcji liczby warstw od materiału objętościowego do monowarstwy (ML) [1,2]. Monowarstwy wykazują szereg interesujących zjawisk optycznych związanych między innymi z selektywnym dolinowym dichroizmem kołowym [3-5] oraz z nietrywialnymi efektami oddziaływania kulombowskiego w geometrii 2D [6-8]. Ponadto, odpowiedź optyczna cienkich warstw S-TMD jest zdominowana przez efekty ekscytonowe [9,10], co otwiera możliwość badania właściwości ekscytonów w materiałach o atomowej grubości.

W swojej pracy skupilem się na właściwościach kompleksów ekscytonowych obserwowanych w cienkich warstwach S-TMD, takich jak MoS_2 , $MoSe_2$, WS_2 , and WSe_2 . Badałem oddziaływanie ekscytonów z fononami, modyfikacje ich właściwości pod wpływem różnego typu otoczenia dielektrycznego i obróbki chemicznej, a także ewolucję ich odpowiedzi optycznej w funkcji temperatury oraz pól elektrycznych i magnetycznych. Poniżej pogrupowałem uzyskane wyniki na pięć tematów:

- *Kompleksy ekscytonowe w cienkich warstwach WS_2 [MM1, MM2]*, które zostały zbadane z wykorzystaniem eksperymentów fotoluminescencji (PL), pobudzenia fotoluminescencji (PLE) i kontrastu odbicia (RC) przeprowadzonych w funkcji liczby warstw i temperatury.
- *Oddziaływanie ekscyton-fonon w monowarstwie WS_2 [MM3]*, które zostało określone za pomocą niekonwencjonalnego typu spektroskopii, zwanego pobudzeniem rozpraszania ramanowskiego (RSE).
- *Ciemne ekscytony w monowarstwach S-TMD [MM4, MM5]*, których emisje zaobserwowano w wyniku zastosowania pola magnetycznego przyłożonego w płaszczyźnie warstw częściowo mieszającego neutralne jasne i ciemne stany ekscytonowe.
- *Serie ekscytonowe w monowarstwach S-TMD [MM6]*, które zostały przebadane w czterech wysokiej jakości monowarstwach S-TMD zamkniętych w heksagonalnym azotku boru (hBN) przy użyciu niskotemperaturowego eksperymentu PL przeprowadzonego w polu magnetycznym skierowanym prostopadle do płaszczyzny ML.
- *Regulacja koncentracji nośników w monowarstwie MoS_2 [MM7]*, co osiągnięto w ML poddanej czterokrotnej obróbce z wykorzystaniem bis(trifluorometano)sulfonimidu (TFSI) i zbadano przy użyciu technik PL, RC i rozpraszania ramanowskiego.

Kompleksy ekscytonowe w cienkich warstwach WS₂

Monowarstwy **dwusiarczku wolframu (WS₂)**, podobnie jak inne materiały należące do S-TMD, są półprzewodnikami z prostą przerwą energetyczną, której minima (maksima) pasma przewodnictwa (walencyjnego) znajdują się w nierównoważnych punktach K⁺ i K⁻ ich heksagonalnej strefy Brillouina (BZ) [11]. Powyżej granicy ML, warstwy WS₂ charakteryzują się skośną przerwą energetyczną obejmującą odpowiednio punkty Λ i Γ pasma przewodnictwa (CB) i pasma walencyjnego (VB).

Kompleksowe badanie optyczne cienkich płatków WS₂ przedstawiono w [MM1]. Badania struktur o grubości od monowarstwy do dziewięciu warstw oraz płatka typu „bulk” o grubości 32 nm wykonano w szerokim zakresie temperatur (5-300 K) przy użyciu technik spektroskopowych, takich jak PL, PLE i RC. Badane próbki zawierające płatki o różnej grubości otrzymano na podłożu Si/SiO₂ metodą eksfoliacji wykorzystującą polidimetylosiloksan (PDMS) [12] z kryształów objętościowych WS₂ (faza 2H). Przedstawione wyniki można podzielić na trzy tematy poświęcone: (1) odpowiedzi optycznej monowarstwy WS₂; (2) skośnej emisji z grubszych warstw (>ML); (3) widmom RC cienkich warstw WS₂.

Charakteryzacja odpowiedzi optycznej monowarstwy WS₂ oraz natura różnych rezonansów ekscytonowych (związanymi z neutralnymi, naładowanymi i zlokalizowanymi kompleksami *e-h*) obserwowanych w widmach typu absorpcyjnego (RC i PLE) oraz PL tego układu jest dyskutowana. Zmierzone niskotemperaturowe ($T=5$ K) widma RC i PLE wykazują trzy rezonanse absorpcyjne, które przypisano do **jednego ekscytonu neutralnego i dwóch ekscytonów naładowanych ujemnie** (trionów ujemnych). Kompleksy te powstają w pobliżu optycznej przerwy energetycznej (zwanej ekscytonem A), który jest mniejsza w odniesieniu do elektronowej przerwy energetycznej (przejście typu pasmo-pasmo) o wartość energii wiązania ekscytonów. Identyfikacja ekscytonu neutralnego jest prosta i zgodna z poprzednimi pracami [13,14], natomiast identyfikacja ekscytonów naładowanych wymagała potwierdzenia. Dokonano tego wykorzystując pomiary widm RC na bramkowanej strukturze z monowarstwą WS₂. Z drugiej strony, niskotemperaturowe widmo PL zmierzone na monowarstwie WS₂ składa się, oprócz wyżej wymienionych ekscytonów, z kilku linii emisyjnych i szerokiego pasma emisyjnego, które są przypisane odpowiednio do rekombinacji promienistej **ekscytonów zlokalizowanych** oraz do widma rekombinacji **par donor-akceptor**.

Zbadano również **ewolucję widm PL cienkich warstw WS₂ w niskiej temperaturze w funkcji liczby warstw**. Zmierzone widma PL grubszych warstw (>ML) są zdominowane przez dwa dobrze zdefiniowane piki emisyjne, które są przypisane do **przejęć Λ - Γ** (ekscytony skośne Λ - Γ). Ponieważ różnica energetyczna między nimi nie zależy od liczby warstw, przypuszcza się, że w procesach rekombinacji biorą udział dwa różne fonony o energiach różniących się o 30 meV i o tym samym wektorze *k* odpowiadającym punktowi Λ strefy Brillouina (w celu dopasowania do różnicy wektorów falowych rekombinujących elektronów z punktu Λ oraz dziur z punktu Γ). Ponadto stwierdzono, że ewolucję energii emisji skośnej Λ - Γ można dobrze odtworzyć za pomocą dość prostego wzoru, który stosuje się do **opisu ewolucji energii w dwuwymiarowych związanych stanach elektronowych w prostokątnej studni z nieskończonymi barierami**.

Ważny wgląd w strukturę wyżej położonych pasm w WS₂ może dostarczyć niskotemperaturowa spektroskopia RC. Silne sprzężenie spin-orbita (SO) w S-TMD, którego źródłem jest obecność atomów metali przejściowych, prowadzi do powstania spinowo-rozszczepionych i spinowo-spolaryzowanych podpasem w VB oraz CB w punktach K strefy Brillouina. Rozszczepienie spin-orbita (SOS) w VB jest bardzo duża i osiąga ~400 meV, podczas gdy dla stanów CB tę wielkość szacuje się na ~30 meV w monowarstwie WS₂ [11].

Kompleksy rozszczepionych stanów elektronowych i dziurowych są określane jako ekscytony A i B. Zmierzone widma RC wykazują grupę rezonansów (obszar ekscytonu A) w pobliżu optycznej przerwy energetycznej, jak również dodatkowe rezonanse przy wyższych energiach, które są związane z ekscytonem B w punkcie K BZ oraz tzw. ekscytonem C, który jest prawdopodobnie związany z bezpośrednim przejściem optycznym, które ma miejsce poza punktami K. **Energie rezonansów związanych z ekscytonami A i B wykazują dość słabą zależność od liczby warstw**, co wskazuje na silny wewnątrzwarstwowy charakter tych kompleksów. **Dla ekscytonu C obserwuje się jednak jego przesunięcie ku czerwieni wraz ze wzrostem liczby warstw**, co wskazuje na wyraźne zmiany w pasmach elektronowych związanych z tym przejściem. Ponadto, zmierzony wielorezonansowy charakter ekscytonu A, pojawiający się w większości badanych grubszych płatków >ML, został zidentyfikowany jako powstający w wyniku **specyficznego schematu hybrydyzacji stanów elektronowych w punktach K** strefy Brillouina warstw S-TMD w fazie 2H.

Badania ekscytonów naładowanych przeprowadzono również w ulepszonej jakości monowarstwie WS₂ zamkniętej pomiędzy płatkami hBN [MM2]. Jak wykazano [15], kapsułkowanie w hBN pozwala na znaczne zmniejszenie niejednorodnego poszerzenia linii widmowych. Umożliwiło to rozdzielenie i zbadanie PL stanu **singletowego (wewnątrz-dolinowego)** i **trypletowego (między-dolinowego)** ekscytonów naładowanych ujemnie w tym materiale. Znaleziona różnica energetyczna między tymi dwoma liniami wynosi około 7 meV, co odzwierciedla raczej słabe efekty oddziaływania wymiany elektron-elektron. Eksperymenty z rozdzielczością polaryzacyjną wykazały, że polaryzacja kołowa światła wzbudzającego jest lepiej zachowana w widmie emisyjnym trionu trypletowego niż w widmie trionu singletowego. Ponadto stwierdzono, że ekscyton singletowy można zaobserwować w dowolnych warunkach (nawet w temperaturze pokojowej), podczas gdy linia emisyjna kompleksu trypletowego jest widoczna tylko w niskich temperaturach.

Oddziaływanie ekscyton-fonon w monowarstwie WS₂

Kolejną badaną właściwość kompleksów ekscytonowych w S-TMD jest związana z **oddziaływaniem ekscyton-fonon**. Zostało ono zbadane w niskiej temperaturze ($T=5$ K) za pomocą niekonwencjonalnej spektroskopii RSE w monowarstwie WS₂ wyeksfoliowanej na podłożu Si/SiO₂ [MM3]. Metoda ta polega na śledzeniu odpowiedzi rozpraszania ramanowskiego, tzn. energia rejestrowanych fotonów jest ustalona, a energia lasera jest strojona. Technika jest analogiczna do PLE, ale analizowany sygnał jest wynikiem procesu rozpraszania ramanowskiego w rezonansowych warunkach pobudzenia.

Przeanalizowano odpowiedź optyczną monowarstwy WS₂ zmierzoną w funkcji energii pobudzenia i w trzech wybranych energiach detekcji: 2,061 eV (w rezonansie z ekscytonem naładowanym ujemnie), 2,078 eV i 2,093 eV (w rezonansie z ekscytonem neutralnym). Energia pobudzenia lasera została dostrojona w zakresie umożliwiającym obserwację modów fononowych pierwszego rzędu w energii rezonansowej zarówno z neutralnym, jak również ekscytonem naładowanym. Wykazano, że widmo RSE silnie zależy od wybranej energii detekcji. **Rezonans wychodzącego światła z ekscytonem neutralnym prowadzi do niezwykle bogatego widma RSE**, które wykazuje kilka nieopisanych wcześniej linii rozpraszania ramanowskiego, podczas gdy nie obserwuje się wyraźnego wpływu na związaną z nim fotoluminescencję tła. Otrzymane widmo ramanowskie obejmuje również procesy rozpraszania ramanowskiego drugiego rzędu, np. $2A'_1$, $E' + A'_1$. Należy wspomnieć, że intensywność modu pozapłaszczyznowego A'_1 jest porównywalna z natężeniem linii emisyjnych zarówno ekscytonu naładowanego, jak i ekscytonu neutralnego A, gdy jest obserwowana dokładnie w energii ekscytonu neutralnego A. **Gdy rejestrowane fotony są**

w rezonansie z trionem ujemnym następuje silne wzmocnienie ekscytonu ujemnie naładowanego.

Ekscytony ciemne w monowarstwach S-TMD

Zauważono powyżej, że oddziaływanie SO prowadzące do spinowo-rozszczepionych i spinowo-spolaryzowanych podpasz zarówno w CB i VB jest szczególnie ważne w monowarstwach STMD. SOS w paśmie walencyjnym w ML jest bardzo duże i wynosi kilkaset meV, podczas gdy wartość jego odpowiednika w paśmie przewodnictwa jest przewidywana na około kilkadziesiąt meV [11]. Ponadto, możliwe są dwie różne kolejności ułożenia podpasz w CB. Ponieważ przejścia optyczne w S-TMD zachodzą z zachowaniem spinu, różne uporządkowania pasz elektronowych w CB ma znaczny wpływ na właściwości optyczne monowarstw. W zależności od znaku SOS w CB, ekscytonowy stan podstawowy może być **jasny** (konfiguracja równoległa spinów górnego pasza w VB i najniższego podpasza w CB, pomiędzy którymi dozwolone jest przejście optyczne) lub **ciemny** (anty-równoległa konfiguracja spinu i przejście międzypaszowe stanu podstawowego jest wzbronione optycznie). Uporządkowanie pasz elektronowych pozwala na ustalenie **dwóch rodzin monowarstw S-TMD: jasnej** (ekscytonowy stan podstawowy jest optycznie aktywny lub jasny) i **ciemnej** (ekscytonowy stan podstawowy jest optycznie nieaktywny lub ciemny). Badania teoretyczne [11] przewidywały rzeczywiście, że ML MoSe₂ i MoTe₂ powinny być jasne, podczas gdy ML WSe₂ i WS₂ są ciemne. Nie było jednak ogólnej zgody co do jasnego lub ciemnego charakteru ML MoS₂ przed naszymi badaniami.

W celu określenia jasnego lub ciemnego charakteru ekscytonowych stanów podstawowych, przeprowadzono bezpośrednie pomiary emisji ekscytonu ciemnego poprzez mieszanie spinu stanów ekscytonów jasnych i ciemnych za pomocą pola magnetycznego przykładanego w płaszczyźnie ML. Pomiary wykonano na czterech monowarstwach S-TMD, tj. MoS₂, MoSe₂, WS₂ i WSe₂, wyeksfoliowanych na podłożach Si/SiO₂ [MM4]. Przewidywano teoretycznie, że zastosowanie **pola magnetycznego w płaszczyźnie prowadzi do domieszki stanu jasnego ekscytonu neutralnego do stanu ciemnego ekscytonu neutralnego**, dzięki czemu ten ostatni rezonans jest możliwy do zaobserwowania w widmach PL [17]. Widma PL monowarstw zmierzono w niskich temperaturach w funkcji pola magnetycznego do 14 T przyłożonego w płaszczyźnie. Uzyskane wyniki pozwoliły na zdefiniowanie **monowarstw WS₂, WSe₂ oraz MoS₂ jako materiałów ciemnych**, tj. układów z prostą przerwą energetyczną, ale z ciemnym ekscytonowym stanem podstawowym, a **MoSe₂ ML jako materiału jasnego** o prostej przerwie energetycznej z jasnym stanem podstawowym ekscytonu. Stwierdzono, że rozszczepienie między ekscytonem jasnym, a ciemnym wynosi około 50 meV w monowarstwach WS₂ i WSe₂, co jest zgodne z oczekiwaniami teoretycznymi, ale jego wartość około 100 meV uzyskana dla ML MoS₂ jest zaskakująco duża.

Badania właściwości ciemnych stanów ekscytonowych kontynuowano również w wysokiej jakości ML WSe₂ zamkniętej w płatkach hBN wykorzystując niskotemperaturowe eksperymenty PL wykonane w polach magnetycznych stosowanych w płaszczyźnie i/lub poza płaszczyzną [MM5]. Teoretycznie przewidywano, że stany ciemnych neutralnych ekscytonów w monowarstwach S-TMD wykazują strukturę subtelną zawierającą tzw. **szare i ciemne kompleksy**, które charakteryzują się odpowiednio **poza-płaszczyznowym i zerowym ekscytonowym momentem dipolowym**. Natomiast jasne ekscytony neutralne posiadają moment dipolowy w płaszczyźnie. Eksperymenty PL prowadzono w konfiguracji pobudzenia i detekcji w kierunku normalnym do płaszczyzny ML. W rezultacie, ze względu na stosunkowo dużą aperturę numeryczną zastosowanego obiektywu mikroskopu w widmach mierzonych przy zerowym polu magnetycznym zaobserwowano emisję ekscytonu szarego. Po przyłożeniu pola

magnetycznego w płaszczyźnie, w widmach PL zaobserwowano zarówno ekscytony szare, jak i ciemne. Główne uzyskane wyniki, które są zgodne z poprzednimi pracami [18,19], uwzględniają następujące obserwacje: (i) linia szarego ekscytonu jest przesunięta ku czerwieni o 38 meV od pikę jasnego ekscytonu neutralnego; (ii) rozszczepienie energetyczne i między ekscytonami szarymi i ciemnymi wynosi około 660 μeV ; (iii) linie ekscytonów szarych i ciemnych są znacznie węższe ($\sim 0,6$ meV) niż linie ekscytonu jasnego (~ 4 meV), co wskazuje na znacznie dłuższe czasy życia ekscytonów ciemnych i szarych w porównaniu z czasem życia ekscytonu jasnego.

Przeanalizowano również właściwości polaryzacyjne ekscytonów ciemnych i szarych rozjaśnianych magnetycznie w polu magnetycznym do 10 T. Linie emisyjne związane z **ekscytonami ciemnymi i szarymi są spolaryzowane liniowo** odpowiadające momentom dipolowym zorientowanym odpowiednio wzdłuż i prostopadle do przyłożonego pola magnetycznego w płaszczyźnie. Aby zbadać i zmieniać dolinowy stopień swobody ekscytonów ciemnych, przeprowadzono eksperymenty PL w obu orientacjach pola magnetycznego, tj. w płaszczyźnie i poza płaszczyzną. Stwierdzono, że o ile pole magnetyczne przyłożone w płaszczyźnie prowadzi do powstania polaryzacji liniowych linii emisyjnych ekscytonów szarych i ciemnych, o tyle zastosowanie poza-płaszczyznowego pola magnetycznego prowadzi do **dalszej przemiany ich polaryzacji na eliptyczną**. Pozwoliło to na wyznaczenie **współczynnika g ekscytonu szarego/ciemnego** na około **-9,6**.

Serie ekscytonowe w monowarstwach S-TMD

Ekscytony dzieli się zwykle na tzw. ekscytony Frenkla i Wanniera-Motta, które odpowiadają ekscytonom występującym w strukturach charakteryzujących się odpowiednio małą i dużą stałą dielektryczną. W półprzewodnikach, co również ma miejsce w przypadku S-TMD, stałe dielektryczne są na ogół duże, co powoduje powstawanie ekscytonów Wanniera-Motta o promieniach większym niż stałe sieci. Ekscytony te charakteryzują się szeregiem wodoropodobnych stanów ekscytonowych, tzw. ekscytonową serią Rydberga, oznaczonych jak w atomie wodoru za pomocą głównych i pobocznych liczb kwantowych, tj. $1s, 2s, 2p, 3s, 3p, 3d$, itd., gdzie $1s$ to stan podstawowy, a stany wyższe to stany wzbudzone. W typowych półprzewodnikowych układach 2D oczekuje się, że drabina energetyczna ekscytonów jest opisana wodoropodobnym szeregiem Rydberga. W typowym eksperymencie optycznym (PL i/lub RC) tylko **szereg stanów ekscytonowych typu s** jest mierzalny ze względu na symetrię i powinien odtwarzać serię stanów o energiach: $\epsilon_n = -Ry^*/(n - 0.5)^2$, $n=1, 2, 3, \dots$, gdzie Ry^* to efektywna energia Rydberga. W przypadku monowarstw S-TMD wykazano wyraźne odchylenie od serii stanów ekscytonowych 2D Rydberga [13]. Główną tego przyczyną jest niejednorodność dielektryczna struktur 2D S-TMD. Przy dużych odległościach $e-h$ oddziaływanie kulombowskie skaluje się wraz z odpowiedzią dielektryczną otaczającego ośrodka, podczas gdy wydaje się być znacznie osłabione przy krótkich odległościach $e-h$ przez zwykle silniejsze ekranowanie dielektryczne w płaszczyźnie 2D. Powszechne podejście do uwzględnienia tego efektu w widmach ekscytonowych monowarstw S-TMD odnosi się do rozwiązań równania Schrödingera, w którym przyciąganie $e-h$ jest przybliżane przez potencjał Rytova-Keldysha (RK). Jednakże, jego rozwiązanie może być znalezione tylko numerycznie.

Serie stanów ekscytonowych zbadano w czterech wysokiej jakości monowarstwach S-TMD, tj. MoS_2 , MoSe_2 , WS_2 i WSe_2 zamkniętych w hBN, w niskotemperaturowym eksperymencie PL przeprowadzonym w obecności pola magnetycznego [MM6]. Wykazano, że **widmo energetyczne serii Rydberga stanów ekscytonowych typu s w monowarstwach S-TMD** przebiega według serii energetycznej: $\epsilon_n = -Ry^*/(n + \delta)^2$. Wartości Ry^* i δ zostały ustalone na podstawie pomiarów magnetoptycznych dla wszystkich badanych materiałów.

W szczególności znaleziono bliskie zeru wartości $\delta = -0.083$ dla ML WSe₂ i $\delta = -0.095$ dla ML MoS₂. W rezultacie, widmo ϵ_n dla obu materiałów jest bardzo podobne do widma 3D atomu wodoru ($\delta=0$). Co więcej, zależność $\epsilon_n = -Ry^*/(n + \delta)^2$ została dobrze odtworzona przy podejściu analitycznym, w którym zakładano, że oddziaływanie $e-h$ jest opisane przez **zmodyfikowany potencjał Kratzera**. Stwierdzono, że efektywna energia $Ry^* = Ry(\mu/\epsilon^2 m_0)$ jest skalowana przez stałą dielektryczną ϵ otaczającego ośrodka hBN oraz przez zredukowaną masę $e-h$ μ , gdzie $Ry = 13.6$ eV i m_0 to masa swobodnego elektronu. Określenie parametrów Ry^* i δ pozwoliło oszacować ekscytonowe energie wiązania (E_b) i zredukowane masy $e-h$ we wszystkich tych strukturach ML. Uzyskane E_b wynoszą około 170 meV i 220 meV odpowiednio dla materiałów na bazie W i Mo. Należy zauważyć, że proponowany model może mieć zastosowanie do innych związanych stanów kulombowskich (np. stanów donorowych i/lub akceptorowych), a także do innych układów, takich jak płytki koloidalne i perowskity 2D.

Regulacja koncentracji nośników w monowarstwie MoS₂

Kolejny aspekt moich badań dotyczył wpływu jakości powierzchni ML na jej właściwości. Jak omówiono powyżej, kapsułkowanie monowarstw S-TMD między płatkami hBN prowadzi do stłumienia wkładu poszerzenia niejednorodnego do szerokości linii rezonansów ekscytonowych. Innym podejściem do modyfikacji powierzchni cienkich warstw S-TMD jest poddanie ich specyficznemu obróbce chemicznej. W szczególności wykazano, że poddawanie monowarstw MoS₂ działaniu TFSI, określanego mianem superkwasu, powoduje znaczny wzrost intensywności PL tego materiału [20].

W celu pogłębienia zrozumienia wpływu superkwasu na monowarstwy S-TMD, zbadano **właściwości optyczne monowarstwy MoS₂ ML** wyeksfoliowanej na podłożu Si/SiO₂ i poddanej czterokrotnej **obróbce superkwasem** wykorzystując spektroskopie PL, RC oraz rozpraszania ramanowskiego [MM7]. Stwierdzono, że wpływ pasywacji superkwasem na widma PL i RC mierzone w $T=5$ K i 300 K jest najbardziej widoczny po pierwszej rundzie. W przypadku eksperymentów w temperaturze pokojowej widoczne są znaczące przesunięcia o około 20-30 meV obserwowanych linii emisyjnych i rezonansów absorpcyjnych w pobliżu ekscytonów A i B po pierwszym procesie pasywacji. Jest to przypisywane zanikaniu rezonansów związanych naładowanymi kompleksami ekscytonowymi w wyniku obróbki superkwasem. Wpływ kolejnych kroków pasywacji (począwszy od drugiego) na widma PL i RC jest mniej wyraźny i najczęściej objawia się monotonicznymi przesunięciami ku czerwieni rezonansów A i B (całkowite przesunięcie wynosi około 10 meV po czwartej rundzie pasywacji). W przypadku pomiarów niskotemperaturowych wpływ superkwasu jest bardziej wyraźny ze względu na mniejsze szerokości linii rezonansów ekscytonowych. W pobliżu ekscytonu A widać wyraźnie rozdzielone rezonanse związane zarówno z neutralnym, jak również ekscytonem naładowanym. Podobnie jak w przypadku temperatury pokojowej, sygnał PL pochodzący z naładowanego kompleksu ekscytonowego jest wygaszany w wyniku obróbki superkwasem, pozostawiając dominującą emisję związaną z ekscytonem neutralnym. Te **dwie obserwacje** zostały wyjaśnione w kategoriach znacznego zmniejszenia **wysokiego naturalnego domieszkowania wyeksfoliowanej monowarstwy MoS₂** (nie poddanej działaniu superkwasu) w połączeniu ze zmniejszonym wpływem **kwantowego efektu Starka**, odzwierciedlającego modyfikację wbudowanego poprzecznego pola elektrycznego w strukturze ze względu na pasywację defektów na powierzchni próbki.

Zbadano również wpływ superkwasu na warunki rezonansowe rozpraszania ramanowskiego. Po czterech procesach pasywacji superkwasem, energia neutralnego ekscytonu A narastająco zmniejszyła się o około 30 meV i stała się porównywalna z energią naładowanego ekscytonu A w wyeksfoliowanej monowarstwie MoS₂. Wzmocnienie

rozpraszania ramanowskiego przy pobudzeniu rezonansowym w pobliżu neutralnego ekscytonu A było wyraźnie obserwowane dla obu modów fononowych: poza-płaszczyznowego A'_1 oraz płaszczyznowego E' . Przeciwnie, gdy pobudzenie było w rezonansie z odpowiednim trionem, linie rozpraszania ramanowskiego stawały się ledwo widoczne. Można zauważyć, że ten wynik jest podobny do tego obserwowanego dla eksperymentu RSE przeprowadzonego na monowarstwie WS₂ i omówionego powyżej.

Podsumowując, przedstawione osiągnięcie dostarczyło kilku nowych wyników, które poszerzają nasze zrozumienie elementarnych oddziaływań między nośnikami ładunku w S-TMD. Najważniejsze, zdaniem autora, są badania ciemnych stanów ekscytonowych oraz proponowany model drabiny ekscytonowej w monowarstwach S-TMD, które mają kluczowe znaczenie dla potencjalnych przyszłych zastosowań w optoelektronice.

Ponadto wykazano, że przedstawione osiągnięcie naukowe wnosi istotny wkład w rozwój fizyki ciała stałego. Potwierdzają to liczne cytowania prac wchodzących w skład osiągnięcia, tj. łączna liczba cytowań prac [MM1]-[MM7] bez autocytowań wynosi 256 (07.10.2021).

Literatura

- [1] K. F. Mak, C. Lee, J. Hone, J. Shan, and T. F. Heinz, *Physical Review Letters* **105**, 136805 (2010).
- [2] A. Splendiani, L. Sun, Y. B. Zhang, T. S. Li, J. Kim, C. Y. Chim, G. Galli, and F. Wang, *Nano Letters* **10**, 1271 (2010).
- [3] K. F. Mak, K. L. He, J. Shan, and T. F. Heinz, *Nature Nanotechnology* **7**, 494 (2012).
- [4] D. Xiao, G. B. Liu, W. X. Feng, X. D. Xu, and W. Yao, *Physical Review Letters* **108**, 196802 (2012).
- [5] K. L. Seyler *et al.*, *Nature Physics* **14**, 277 (2018).
- [6] K. F. Mak, K. L. He, C. Lee, G. H. Lee, J. Hone, T. F. Heinz, and J. Shan, *Nature Materials* **12**, 207 (2013).
- [7] L. Britnell *et al.*, *Science* **340**, 1311 (2013).
- [8] A. Ramasubramaniam, *Physical Review B* **86**, 115409 (2012).
- [9] M. Koperski, M. R. Molas, A. Arora, K. Nogajewski, A. O. Slobodeniuk, C. Faugeras, and M. Potemski, *Nanophotonics* **6**, 1289 (2017).
- [10] G. Wang, A. Chernikov, M. M. Glazov, T. F. Heinz, X. Marie, T. Amand, and B. Urbaszek, *Reviews of Modern Physics* **90**, 021001 (2018).
- [11] A. Kormanyos, G. Burkard, M. Gmitra, J. Fabian, V. Zolyomi, N. D. Drummond, and V. Fal'ko, *2d Materials* **2**, 022001 (2015).
- [12] A. Castellanos-Gomez, M. Buscema, R. Molenaar, V. Singh, L. Janssen, H. S. J. van der Zant, and G. A. Steele, *2d Materials* **1**, 011002 (2014).
- [13] A. Chernikov, T. C. Berkelbach, H. M. Hill, A. Rigosi, Y. L. Li, O. B. Aslan, D. R. Reichman, M. S. Hybertsen, and T. F. Heinz, *Physical Review Letters* **113**, 076802 (2014).
- [14] A. Chernikov, A. M. van der Zande, H. M. Hill, A. F. Rigosi, A. Velauthapillai, J. Hone, and T. F. Heinz, *Physical Review Letters* **115**, 126802 (2015).
- [15] F. Cadiz *et al.*, *Physical Review X* **7**, 021026 (2017).
- [16] K. Kosmider, J. W. Gonzalez, and J. Fernandez-Rossier, *Physical Review B* **88**, 245436 (2013).
- [17] A. O. Slobodeniuk and D. M. Basko, *2d Materials* **3**, 035009 (2016).
- [18] G. Wang *et al.*, *Physical Review Letters* **119**, 047401 (2017).

- [19] C. Robert *et al.*, Physical Review B **96**, 155423 (2017).
[20] M. Amani *et al.*, Science **350**, 1065 (2015).

5. Informacja o wykazywaniu się istotną aktywnością naukową albo artystyczną realizowaną w więcej niż jednej uczelni, instytucji naukowej lub instytucji kultury, w szczególności zagranicznej.

Staż w Grenoble

Po uzyskaniu stopnia naukowego doktora, rozpocząłem stypendium podoktorskie w grupie dr. Marka Potemskiego w Narodowym Laboratorium Silnych Pól Magnetycznych w Grenoble, Francja. Moja decyzja o kontynuowaniu pracy w tej grupie była związana z całkowitą zmianą tematyki badawczej w trakcie stypendium podoktorskiego w stosunku do studiów doktoranckich. Byłem zatrudniony jako naukowiec przez 35 miesięcy w projekcie „*Magneto-optics of layered materials: exploring many-body physics in electronic systems with unconventional bands*” finansowanym przez Europejską Radę ds. Badań Naukowych w ramach programu Advanced Grant.

Moje zadania badawcze podczas stażu w Grenoble dotyczyły badania właściwości optycznych materiałów warstwowych 2D, w szczególności cienkich warstw półprzewodnikowych dichalkogenków metali przejściowych. Wykorzystywałem szerokie spektrum możliwości eksperymentalnych, które obejmowały pomiary widm PL, PLE, RC oraz rozpraszania ramanowskiego wykonywanych z rozdzielczością przestrzenną rzędu kilku mikrometrów. Ponadto te eksperymenty były prowadzone w różnych warunkach zewnętrznych, m.in. w funkcji temperatury (4,2 K - 300 K), w zewnętrznym polu magnetycznym (do 14 T z zastosowaniem cewki nadprzewodzącej i do 30 T z zastosowaniem magnesu rezystywnego) w dwóch konfiguracjach: Faradaya i Voigta oraz w funkcji przyłożonego pola elektrycznego do struktur bramkowanych.

Wyniki eksperymentalne uzyskane podczas tego stażu podoktorskiego (jako główny lub współuczestniczący badacz) przyczyniły się do opublikowania ponad 24 artykułów poświęconych właściwościom materiałów 2D, które ukazały się w latach 2015-2019 w takich czasopismach jak: *Nature Communications*, *Nano Letters*, *2D Materials*, *Nanoscale*, *Nanophotonics*.

Staż w Manchesterze

Po powrocie do Polski, moje zatrudnienie na Wydziale Fizyki UW było związane z realizacją kierowanego przeze mnie projektu „*Oddziaływanie ekscyton-fonon w cienkich warstwach monochalkogenów metali przejściowych*” finansowanego przez Narodowe Centrum Nauki w ramach programu Sonata. Projekt był realizowany we współpracy z prof. Amalią Patané z Uniwersytetu w Nottingham oraz dr. Romanem Gorbachevem z Uniwersytetu w Manchesterze.

Głównym elementem tego projektu był 6-miesięczny staż naukowy w grupie dr. Romana Gorbacheva w Narodowym Instytucie Grafenowym (NGI), na Uniwersytecie w Manchesterze, Wielka Brytania. Celem stażu była nauka eksfoliacji i deterministycznego transferu próbek zawierających cienkie warstwy wybranych monochalkogenów metali w kontrolowanych warunkach w komorze rękawicowej wyposażonej w system do deterministycznego przenoszenia cienkich płatek materiałów warstwowych. W wyniku przeprowadzonych prac

wytworzyłem szereg próbek zawierających cienkie warstwy GaSe i InSe zamknięte w heksagonalnych płatkach BN. Badania tych próbek przyczyniły się do publikacji artykułu w czasopiśmie *Faraday Discussion*.

Ponadto podczas tego stażu skonstruowałem w NGI system do pomiarów generacji drugiej harmonicznej na cienkich płatkach materiałów warstwowych. Technika ta pozwala określić kąty skręcenia pomiędzy osiami krystalograficznymi cienkich warstw ułożonych jedna na drugiej, które tworzą bardziej złożoną strukturę van der Waalsa. Za pomocą tego systemu określiłem kąty skręcenia pomiędzy monowarstwami MoSe₂ i WS₂ w serii sztucznych dwuwarstw. Badanie właściwości optycznych tych próbek zostało opublikowane w czasopiśmie *Nature*.

6. Informacja o osiągnięciach dydaktycznych, organizacyjnych oraz popularyzujących naukę lub sztukę.

Prowadzenie prac dyplomowych

Prace magisterskie:

- Opieka nad pracą magisterską Pani Doroty Staszczuk pt. „Spektroskopia ramanowska monochalkogenków galu” (2018, Wydział Fizyki, Uniwersytet Warszawski).
- Opieka nad pracą magisterską Pana Marcina Osiekowicza pt. „Spektroskopia ramanowska selenku indu” (2019, Wydział Fizyki, Uniwersytet Warszawski).
- Opieka nad pracą magisterską Pani Łucji Kipczak pt. „Spektroskopia optyczna cienkich warstw diselenku renu (ReSe₂)” (2021, Wydział Fizyki, Uniwersytet Warszawa).

Rozprawy doktorskie:

- Promotor pomocniczy rozprawy doktorskiej Pani Magdaleny Grzeszczyk pt. „Rozpraszanie Ramana w cienkich warstwach telurku molibdenu (MoTe₂)” (2020, Wydział Fizyki, Uniwersytet Warszawski).
- Promotor pomocniczy rozprawy doktorskiej Pani Małgorzaty Zinkiewicz (w trakcie) pt. „Kompleksy ekscytonowe w monowarstwach dichalkogenków metali przejściowych”.
- Promotor pomocniczy rozprawy doktorskiej Pani Katarzyny Olkowskiej-Pucko (w trakcie).
- Promotor pomocniczy rozprawy doktorskiej Pani Łucji Kipczak (w trakcie).

Nauczanie

Nauczanie przed uzyskaniem stopnia doktora

- Pracownia technik pomiarowych (pracownia),
- Pracownia fizyczna i elektroniczna (pracownia),
- Fizyka II (elektryczność i magnetyzm) (pokazy do wykładu).

Nauczanie po uzyskaniu stopnia doktora

- Podstawy fizyki II (elektryczność i magnetyzm) (ćwiczenia),
- Podstawy elektromagnetyzmu (ćwiczenia)
- Wstęp do optyki i fizyki materii skondensowanej (ćwiczenia),
- Współczesne metody doświadczalne fizyki materii skondensowanej i optyki (ćwiczenia),
- Pracownia technik pomiarowych dla astronomów (pracownia),
- Proseminarium licencjackie (seminarium).

Popularyzacja nauki

Byłem zaangażowany w następujące działania popularyzatorskie:

- udział w Komitecie 6. (2012) oraz 7. (2013) edycji Ogólnopolskiego Konkursu Fizycznego „Poszukiwanie talentów”.
- organizacja warsztatów pt. „Z makro- do nano- w trzech prostych krokach” w ramach 23. Festiwalu Nauki, 25 – 27 września 2019.
- organizacja warsztatów pt. „Z makro- do nano- w trzech prostych krokach” w ramach 24. Festiwalu Nauki, zdalnie, 22 września 2020.

Osiągnięcia organizacyjne

- członek Rady Naukowej Dyscypliny Nauki Fizyczne na Uniwersytecie Warszawskim (2019-obecnie).
- organizacja zdalnych warsztatów naukowych pt. *Joint annual meeting International Research Projects, CNRS “2DM” and “TeraMIR”*, 30 listopada – 1 grudnia 2020.

7. Oprócz kwestii wymienionych w pkt. 1-6, wnioskodawca może podać inne informacje, ważne z jego punktu widzenia, dotyczące jego kariery zawodowej.

Stypendia

- 2010 – 2014 – **stypendium doktoranckie** w ramach projektu Unii Europejskiej „*International PhD studies at the Faculty of Physics UW*”.
- 2018 – 2021 – **stypendium dla wybitnych młodych naukowców** Ministra Nauki i Szkolnictwa Wyższego, Polska.

Nagrody

- 2019 – **Nagroda Rektora** Uniwersytetu Warszawskiego (II stopnia).
- 2020 – **Nagroda „The IOP Outstanding Reviewer”** czasopisma *2D Materials* za rok 2019.
- 2021 – **Zespołowa Nagroda Rektora** Uniwersytetu Warszawskiego (część 1/3).

.....
(Podpis wnioskodawcy)