

Streszczenie

Poniższa praca poświęcona jest badaniom oddziaływań oraz dynamiki stanów ekscytonowych w pojedynczej warstwie MoSe_2 w obecności swobodnych nośników. Półprzewodnikowe dichalkogenki metali przejściowych (*ang. Transition Metal Dichalcogenides, TMDs*), do których należy związek diselenku molibdeny, cieszyły się na przestrzeni ostatniej dekady ogromnym zainteresowaniem środowiska naukowego. Wynikało ono w dużej mierze ze szczególnych właściwości pojedynczych warstw tych kryształów. Wśród najbardziej istotnych cech TMDs należy wymienić ich silną odpowiedź optyczną, mocne wiązania ekscytonowe, a także specyficzną konfigurację pasmową umożliwiającą selektywną kreację nośników w danej K-dolinie strefy Brillouina. Również z tych powodów materiały te posiadają ogromny potencjał na przyszłe zastosowania w wielu dziedzinach nanotechnologii, w szczególności w urządzeniach optoelektronicznych. Z punktu widzenia potencjalnej komercjalizacji, jak również rozwoju fizyki ciała stałego ważne jest dokładne poznanie procesów relaksacji i oddziaływań stanów ekscytonowych. Mają one bezpośrednie przełożenie zarówno na liniowe jak i nieliniowe efekty obserwowane w sygnale optycznym. Podobnie istotnym zagadnieniem są zjawiska towarzyszące domieszkowaniu warstw TMDs. W tym kontekście, opracowane w ostatnich latach technologie bramkowania elektrycznego umożliwiły precyzyjne strojenie indukowanej w warstwie koncentracji nośników. Podejście to doprowadziło do wielu nowych odkryć, jak chociażby obserwacja kryształu Wignera. Płatki dichalkogenków metali przejściowych wzbogacone o elektrostatycznie wyindukowany gaz elektronów lub dziur w dalszym ciągu stanowią atrakcyjną platformę do badań fundamentalnych oddziaływań ekscyton-nośnik w dwóch wymiarach.

Przedstawione w pracy doświadczenia oparte były o rozdzielcze czasowo pomiary spektroskopowe: ultraszybkie rezonansowe eksperymenty typu pompa-sonda, heterodynową interferometrię spektralną mieszania czterech fal oraz pomiary zaniku luminescencji mierzone za pomocą kamery smugowej. Obiektem badań były heterostruktury pojedynczych warstw MoSe_2 otoczone płatkami heksagonalnego azotku boru, służącego poprawie ich właściwości optycznych.

Za pomocą pierwszej z wymienionych technik, w której rejestrowano widma odbicia, wyznaczono parametry opisujące siłę oddziaływań ekscyton-ekscyton

oraz ekscyton-nośnik oraz związane z nimi efekty spektralne takie jak zmiana energii, intensywności i szerokości linii badanego rezonansu ekscytonowego. Zaobserwowano także złożoną dynamikę zaniku tworzonych ekscytonów, którą w pełni odwzorowano przy pomocy zaproponowanych modeli teoretycznych. Na ich podstawie wyznaczono skale czasowe różnych procesów relaksacyjnych zachodzących w badanym systemie. Zmierzono w szczególności czas życia i rozpraszania międzypolinowego ekscytonów neutralnych, czas formacji i zaniku ekscytonów naładowanych oraz czas relaksacji międzypolinowej nośników. Scharakteryzowano także jak opisana dynamika zależy od koncentracji elektronów.

Za pomocą pomiarów mieszania czterech fal zbadano wpływ dwuwymiarowego gazu nośników na skrócenie czasu koherencji stanów ekscytonowych. Wykazano także, że zwiększanie domieszkowania elektrostatycznego prowadzi do ekranowania obserwowanych niejednorodności przestrzennych i mniejszego poszerzenia niejednorodnego ekscytonu neutralnego, a także silniejszego sprzężenia koherentnego pomiędzy ekscytonem neutralnym i naładowanym.

Na podstawie pomiarów zaniku luminescencji w polu magnetycznym pokazano także, że silne pole magnetyczne redukuje efektywność procesu formacji trionu i skutkuje wolniejszą relaksacją ekscytonów neutralnych.

Abstract

The following work is devoted to the studies of exciton interactions and dynamics in a MoSe₂ monolayer in the presence of free carriers. This particular material belongs to the family of Semiconductor Transition Metal Dichalcogenides (TMDs), which were met with considerable interest of the scientific community in the past decade. This was mostly due to the particular properties of monolayers of these crystals. Among their most significant qualities one should mention their considerable optical activity, high binding energies of excitons and a band configuration, that facilitates selective creation of carriers within a given K-point valley of the Brillouin zone. Also because of this there exist nowadays a great potential for their utilization in nanotechnology, particularly in new types of optoelectronic devices. From the point of view of any potential commercialization but also keeping in mind the development of the field of solid state physics it is important to have a thorough understanding of the relaxation and interactions of exciton states in TMDs. The presence of these excitations has a direct influence both on the linear as well as non-linear effects one can observe in the optical signal. Similarly crucial are any phenomena related to the doping of TMD monolayers. In recent years there was a significant progress in the methods of electrical gating of these materials, allowing for a precise control of the free carrier density. This led to many breakthrough achievements, e.g. the discovery of a Wigner crystal state. Single TMD flakes with an electrostatically induced carrier gas remain an attractive platform for the fundamental studies of exciton-carrier interactions in 2D.

The experiments presented in this work were mainly based on time-resolved spectroscopy methods: ultrafast pump-probe spectroscopy, heterodyne four-wave-mixing spectral interferometry and measurements of the photoluminescence decay, that utilized a streak camera. The measured samples consisted of heterostructures of monolayer MoSe₂ encapsulated in thin flakes of hexagonal Boron Nitride. This approach is often used for the improvement of the optical properties of the exciton states in TMDs. The pump-probe measurements, which probed reflection spectra of the studied samples, allowed to extract different parameters, which govern the strength of exciton-exciton and exciton-carrier interactions, as well as the related changes in energy, intensity and

linewidth of the studied exciton resonances. Moreover, time-resolved experiments displayed an involved temporal evolution of the photocreated exciton populations. Their dynamics was fully reproduced with the proposed theoretical models. This also facilitated determination of the characteristic timescales of various relaxation processes: lifetime and intervalley scattering time of neutral exciton, formation and decay time of charged exciton and intervalley scattering time of free carriers. Furthermore, the influence of an increasing electron density on the measured dynamics was also characterized.

In the four-wave-mixing experiments it was shown how the presence of 2D carrier gas leads to shortening of coherence times of the exciton states. An important finding was the observation that increasing electrostatic doping results in screening of spatial dielectric disorder and a reduction of the neutral exciton inhomogeneous broadening. Presented results also indicate that such an increase of the carrier density leads to stronger coherent coupling between charged and neutral excitons.

Presented measurements of exciton photoluminescence decay performed in magnetic field also displayed a pronounced increase of the neutral exciton lifetime showcasing how a strong magnetic field results in reduced efficiency of trion formation process.