

MEMORANDUM OF UNDERSTANDING

BETWEEN

SUNGKYUNKWAN UNIVERSITY, Korea

AND THE

FEDERAL UNIVERSITY OF SÃO CARLOS, Brazil

In accordance with a mutual desire to promote international cooperation between Sungkyunkwan University (hereinafter “SKKU”), initially or especially for the interest of the Department of Energy Science, and the Federal University of São Carlos (hereinafter “UFSCar”), initially for the interest of its Department of Physics and Graduate Program on Physics, the Parties enter the following Agreement for cultural, educational, and scientific cooperation.

ARTICLE 1: GENERAL

The Parties will encourage direct contact and cooperation between their faculty members, departments, institutes, and researchers subject to the provisions of this Agreement.

The Parties shall cooperate initially or especially for the interest of their respective abovementioned academic unities, in the equivalent, similar or corresponding fields of study where they operate. Within the fields of study, both Institutions agree to the following general forms of cooperation:

- 1.1 joint research activities, publications, and library exchanges, *e.g.*, the development of the joint research project “Effect of Moiré pattern on physical properties of twisted van der Waals heterostructures” (see Annex B), which work plans shall be timely attached hereto pursuant to Article 2 hereof (see Annex A);
- 1.2 exchange of academic information in the fields of interest to the Parties;
- 1.3 exchange of faculty members and students for study and research;
- 1.4 other cultural, educational, scientific, and academic programs, projects and activities that the Parties may mutually desire to develop.

ARTICLE 2: TERMS OF IMPLEMENTATION

Themes of joint activities, conditions for utilizing the results achieved, arrangements for specific visits and exchanges, and other forms of cooperation may be negotiated for each specific case in a separate written agreement, where the case, but also shall observe the rules and regulations in force at both Institutions, will be subject to formal programs, projects or work plans that have been prior approved by their own authorities or authorized bodies, must be displayed following the format provided in Annex A hereto, and in all cases shall be contingent on the availability of funding.

ARTICLE 3: GENERAL CONDITIONS FOR THE DEVELOPMENT OF ACTIVITIES

Notwithstanding the previous provisions, it is agreed hereby that, where the case, faculty members, researchers and students taking part in activities under this Agreement shall comply with legal immigration requirements of the country where the host institution is situated and must purchase health, personal accident, civil liability, and medical and mortal remains repatriation insurances featuring coverage for the whole period of their respective exchange.

Students participating in exchanges under this Agreement will be waived from academic fees at the host institution, where required.

ARTICLE 4: INTELLECTUAL PROPERTY RIGHTS

All intellectual property solely conceived and/or developed by SKKU during the course of this MOU shall be owned by SKKU. All intellectual property solely conceived and/or developed by UFSCar during the course of this MOU shall be owned by UFSCar.

Intellectual property jointly conceived and/or developed by SKKU and UFSCar will be jointly owned by SKKU and UFSCar in accordance with their respective contribution to the jointly generated intellectual property, as well as with the policies of both Parties and each funding agency eventually engaged in the corresponding collaborative activities. Their contributions to the jointly generated intellectual property shall be determined by the importance of their intellectual contribution to the jointly generated work result of the collaborative activities.

Each Party may use such property for research and scholarly purposes. Both Parties agree to collaborate in the protection, if appropriate, and application of such intellectual property for commercial or other purposes on mutually acceptable terms to be negotiated in good faith between the Parties.

ARTICLE 5: CONFIDENTIALITY

Any results or information exchanged between the Parties under this Agreement, which are specified as confidential, shall not be disclosed to the third parties, without the written approval from the providing Party.

Additionally, when exchanging confidential results or information under this Agreement, both Parties commit to comply with their respective policies, as well as the policies of each funding agency eventually engaged in the corresponding collaborative activities.

ARTICLE 6: PUBLICATIONS

The Parties shall jointly publish and divulge work results of the collaborative activities under this Agreement, in accordance with their respective policies, as well as the policies of each funding agency eventually engaged in such activities.

ARTICLE 7: DURATION, AMENDMENT, TERMINATION

This Agreement becomes effective on the date of its signing by the authorized representatives of the Parties. It shall be effective for five (5) years and reviewed prior to renewal. It may be terminated by either Party providing sixty (60) days advance written notice to the other Party along with return receipt, and may be amended by mutual written agreement.

ARTICLE 8: INDEMNIFICATION, SETTLEMENT OF DISPUTES

This Agreement shall not create legally enforceable rights and cannot be the basis of any legal claim between the Parties.

The Parties shall defend and hold harmless the other party from any and all damages, costs, claims, and/or actions arising from such first Party's negligence, misconduct, and/or other tortuous activity.

Questions and disputes arising from the interpretation or execution of this Agreement will be friendly settled by both Parties. In case an amicable solution is not possible, they shall jointly appoint a third party, natural person, to act as arbitrator.

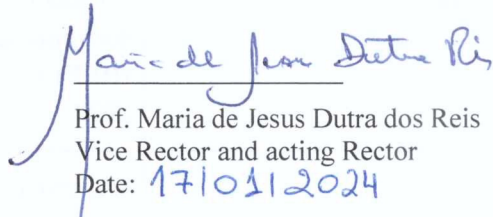
The Parties ensure that the individuals signing this Agreement have the authority to sign in the capacity indicated. This Agreement is to be executed in English and Portuguese in duplicate, the copies in both languages being considered original. In case of any divergence of interpretation of this MOU, the English text shall prevail.

FOR Sungkyunkwan University
25-2, SUNGKYUNKWAN-RO,
JONGNO-GU, SEOUL, KOREA
03063

FOR the Federal University of São Carlos
235KM WASHINGTON LUÍS HIGHWAY,
SÃO CARLOS, STATE OF SÃO PAULO, BRAZIL
13565-905





Prof. Ji-Beom Yoo
President
Date: 22/03/2024



Prof. Maria de Jesus Dutra dos Reis
Vice Rector and acting Rector
Date: 17/01/2024



ANNEX A – Display format of the specific cultural, educational, scientific, and academic program, project or activity to be jointly implemented under this Agreement

<p>Activity nature/title</p>	<p>Joint research project “Effect of Moiré pattern on physical properties of twisted van der Waals heterostructures”, selected by São Paulo Research Foundation (FAPESP) on the framework of the Joint Call for Proposals: National Research Foundation of Korea (NRF) and São Paulo Research Foundation (FAPESP) 2022</p>
<p>Funding source</p>	<p>FAPESP Grant Number 22/08329-0, in connection with the Joint Call for Proposals: National Research Foundation of Korea (NRF) and São Paulo Research Foundation (FAPESP) 2022</p>
<p>Principal researcher – Federal University of São Carlos</p>	<p>Prof. Yara Galvão Gobato, Ph.D.</p>
<p>Principal researcher – Sungkyunkwan University</p>	<p>Prof. Jeongyong Kim, Ph.D.</p>
<p>Signature for and on behalf of the Federal University of São Carlos</p>	<p>Name: Prof. Maria de Jesus Dutra dos Reis, Ph.D.</p> <p>Title: Vice Rector and acting Rector</p> <p>Signature: </p> <p>Date: 17/01/2024</p>
<p>Signature for and on behalf of Sungkyunkwan University</p>	<p>Name: Prof. Ji-Beom Yoo, Ph.D.</p> <p>Title: President</p> <p>Signature: </p> <p>Date: 22/03/2024</p>

ANNEX B – Research project to be jointly developed: “Effect of Moiré pattern on physical properties of twisted van der Waals heterostructures”

See enclosed project (preliminary, provisional version in English language; full version in Korean language).

Bilateral Exchange Program Proposal

Maximum 7 pages

1. Project Summary

Program		Bilateral Exchange Program (Brazil)			
Project Title	Korean	반데르발스 이종구조의 모아레 패턴이 물리적 특성에 미치는 영향 연구			
	English	Effect of Moiré pattern on physical properties of twisted van der Waals heterostructures			
Program Type		Research Exchange			
Principal Investigator(PI)		Name	Jeongyong Kim	Organization	Sungkyunkwan University
Foreign Principal Investigator (FPI)		Name	Yara Galvão Gobato	Organization	Federal University of Sao Carlos

1.1 Project Objectives

The long-term goal of the project is to start a collaboration to contribute to the applied and fundamental physics of emerging van der Waals heterostructures and the development of new applications of devices based on these. In order to meet this goal, the project will have the following specific objectives: (1) Implement strategies to achieve high-quality 2D samples/devices; (2) Study the effects of moiré pattern on exciton-exciton interaction and quantum yield of IEs (2) Study the electronic and optical properties of these heterostructures with different twisted angles; (3) Apply the obtained conclusions to design/model novel van der Waals devices; (4) Develop and test prototypes; (5) discuss opportunities for future grants and long-term collaboration.

1.2 Project Description

Van der Waals heterostructures are interesting systems due to their unique optical, electronic, mechanical and magnetic properties. Particularly, several recent studies were focused on heterostructures based on monolayers of transition metal dichalcogenide (TMD) materials. The monolayers of transition metal dichalcogenide (TMD) materials are direct gap semiconductor materials which exhibit a direct band gap at two inequivalent $\pm K$ valleys and strong excitonic effects due to strong out-of-plane quantum confinement, large in-plane carrier effective mass and small dielectric constant. A strong spin-orbit coupling and lack of inversion symmetry lift the spin degeneracy of the electron and hole states and lock the spin and valley degrees of freedom, the $\pm K$ valleys can be individually addressed by using right- (σ^+) and left-handed (σ^-) circularly polarized light. Under external magnetic fields, interesting new phenomena can be observed such as valley Zeeman splitting and magnetic-field-induced valley polarization. The exciton physics of these 2D materials becomes even richer when they are vertically stacked to form van der Waals (vdW) heterostructures. Actually, when two atomically thin van der Waals (vdW) layers are vertically stacked together, the atomic alignment between the layers exhibits periodic variations, leading to a new type of in-plane superlattice known as moiré superlattice/pattern. The period of these moiré superlattices is determined by the lattice constant mismatch and the twist angle between the two layers. In most cases, these vdW heterostructures have a type-II band alignment and important effects of Moiré superlattices which depends on the twist angle between stacking layers. The strong Coulomb interaction in TMD materials gives rise to the formation of interlayer moiré excitons (IEs) with electrons and holes located in different TMD layers. Furthermore, there are also heterostructures where the electron (or hole) wavefunction is distributed over both layers, and these excitons are referred to as hybrid excitons. These hybrid excitons appear in TMD

heterostructures when the conduction bands or the valence bands between the two layers are close in energy. There are two types of heterostructure: near-commensurate and incommensurate heterostructures, depending on whether the two layers share the same chalcogen atoms. In near-commensurate (for example, $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$), the lattice constants are very similar, leading to a large range of possible moiré supercell sizes ($\sim 1\text{--}100$ nm) or supercell densities. In incommensurate heterostructures consisting of two TMD monolayers with different chalcogen atoms (for example, $\text{MoS}_2/\text{WSe}_2$), the lattice constants differ substantially (by $\sim 4\%$) and the largest possible moiré supercell is ~ 8 nm laterally. This difference has important impact in twist-angle-dependent optical properties. For incommensurate heterostructures one may expect stronger lateral confinement which can result in more important changes on the optical properties of intralayer and interlayer excitons. The IEs are observed for stacking angles of around 0° (AA stacking) and 60° (AB stacking) in which negligible momentum mismatch allows radiative recombination of charge carriers at the K points leading to pronounced photoluminescence (PL) from IEs that is red-shifted from monolayer exciton PL. The IEs have high binding energies ($>100\text{meV}$) making them stable at room temperature and robust against dissociation in applied electric fields. Such systems are promising systems to investigate correlated electron phenomena, high-temperature exciton condensation and emergent valley–spin physics due to the dipolar nature of the IEs. This moiré pattern and the lateral potential depth, which can localize IEs, can be controlled by the relative orientation angle between the layers and results in a significant impact on the optical response. The twist angle of the heterostructure is usually determined by polarization resolved second harmonic generation (SHG). Due to the IEs inherent electrical dipole, their energy eigenstates can also be controlled by electrical fields, which opens up exciting opportunities to investigate high-temperature exciton condensation, single photon emission and valley–spin optoelectronics. Because the interaction strength between moiré-localized interlayer excitons depends on their spatial separation, the effective g-factor of these bound particles sensitively depends on the twist angle. Particularly, for $\text{WSe}_2\text{-MoSe}_2$ heterostructures with twist angles close to 0° , an effective g-factor in the range of $g \sim +6$ is observed while for twist angles close to 54° , a value of $g \sim -15$ is usually observed. These values are very different from g-factors observed in individual monolayer TMD ($g \sim -4$). In both cases, the values can be roughly explained by first principle methods which account for the angular momentum character of conduction and valence states in monolayer and bilayer materials. The details of observed deviations from those rough estimates and in particular the impact of varied exciton-exciton interactions is, however, not understood

Particularly interesting for this proposal is the situation that in carefully chosen material combinations and twist angles, the excitonic bands of intra- and interlayer excitons can hybridise, resulting in the resonant enhancement of the moiré superlattice effects. The hybridization strength is continuously tuneable with twist angle in the vicinity of 0° and 60° . As a result of the hybridization, additional excitonic features are expected in the reflectance contrast (RC), which can be associated to moiré superlattice effects leading to the formation of minibands for hybridized excitons. This effect occurs because excitons are formed from holes residing in one layer bound to a twist-dependent superposition of electron states in the adjacent monolayers. When the heterostructures are almost aligned, resonant mixing of the electron states leads to enhanced effects of the heterostructure’s moiré pattern on the exciton dispersion and optical spectrum. Three brightly hybridised excitons have been predicted and experimentally observed in close energetic proximity to the intralayer exciton near 0° and 60° twist angles. Furthermore, bilayers with different chalcogenide atoms, such as WS_2/WSe_2 , are expected to exhibit a deeper moiré potential because a larger lattice mismatching leads to a stronger local strain and layer-spacing variations. Therefore, these theoretical predictions motivate optical and magneto-optical measurements of intralayer and IE excitons in different heterostructures such as gated $\text{MoSe}_2\text{-WS}_2$ or $\text{WS}_2\text{-WSe}_2$ heterostructures.

There are also several open questions related to the effect of the moiré pattern on physical properties of these van der Waals heterostructures. For example, to know if excitons are localized within moiré supercells is an important fundamental question with great implications for applications particularly for quantum information science as quantum emitters with tunable chirality. There is also great interest to investigate correlated electronic phases probed by optical spectroscopy in gated van der Waals heterostructures where the carrier density and electrical field can be controlled by gate voltage. The TMD heterostructures have been proposed as a new platform to simulate the Hubbard model with the unprecedented advantage that both the bandwidth and interaction strength are widely

Furthermore, it was recently shown that two-dimensional ferromagnetic vdW materials are also promising as effective building blocks for a new generation of “spintronics” devices. Particularly, by combining 2D ferromagnets (FMs) with TMDs, there is an advantage to use magnetic proximity exchange effects for making materials magnetic without hosting magnetic ions. Furthermore, the proximity exchange in TMD monolayers due to a stacked ferromagnetic monolayer on top can also be tuned by twisting the layers and by applying gate voltage. The interplay of exchange and valley Zeeman, and this gate and twist dependence considerably motivates the explorations of Van der Waals heterostructures/devices with stacked TMDs and 2D ferromagnets.

However, having high quality samples is an important condition for this proposal for both fundamental physics and possible applications. For example, it would avoid samples with highly disordered moiré pattern and for the observation of fine structures of exciton resonances that could be attributed to moiré mini-bands. Therefore, it is important to develop strategies to improve the quality of heterostructures with hexagonal boron nitride (hBN) encapsulation or alternative low cost 2D dielectric materials encapsulation. In addition, the improvement of quantum yield of IEs in twisted vdW heterostructures is an important issue for possible applications in optoelectronics.

This project proposes a thorough investigation on the optical and magnetic of high quality twisted bilayers, through both experimental measurements and theoretical modeling of emergent physical properties of intralayer and interlayer excitons. We intend to experimentally probe emergent excitonic phenomena in moiré patterns (twisted, mismatched, strained) of few-layer vdW crystals of high quality and build the multiscale theoretical model needed not only to describe them, but also to examine different strategies to tune and control them, based on a unique blend of complementary experimental facilities, at Sungkyunkwan University and Universidade Federal de São Carlos (UFSCar), Brazilian Synchrotron Light Laboratory (LNLS) and theoretical and computational expertises of Universidade Federal do Ceará (UFC).

Research Programme:

- (a) Preparation of high quality 2D heterostructures/devices of different materials and stack angles;
- (b) Measurements of nano-spectroscopy properties of van der Waals heterostructures with twisted layers
- (c) Study the effect of gate voltage and stacking angle on optical and magneto-optical properties of interlayer excitons from VdW field-effect devices;
- (d) Study the effect of doping on optical and magnetic properties of 2D magnets by measuring low-temperature Raman Spectroscopy and photoluminescence
- (e) Study of magnetic proximity effects in twisted hBN/2D magnet/TMD/hBN heterostructures.

Research Programme and Role of Partners:

The execution of this project will be organized into work packages (WP)

WP1: Sample fabrication

Task 1: Exfoliation, dry layer transfer and annealing techniques for the fabrication of high quality vdW heterostructures composed by different combinations of TMDs and 2D magnets, with different twist angles will be **concurrently** performed by PhD/Master students of **SKKU and UFSCAR** in the research group at LNLS, in collaboration with Dr. Ingrid D. Barcelos.

Task 2: Inter-layer twist angles will be determined by polarization dependent SHG measurements, in collaboration with other Brazilian groups.

WP2- Optical measurements

Task 1: Nano-optical properties (nano-PL and nano-Raman) will be investigated in South Korea. Temp-dependent nano PL and nano Raman at 3-350K will be performed to confirm the formation of IEs. Excitation energy-dependent PL study will also be performed in SKKU to find the resonance excitation of IEs.

Task 2: The dependence of exciton lifetime on twisting angle will be investigated by time-resolved PL system in SKKU and the dependence of localization of IEs on moiré period will be revealed. This information will be used to establish the diffusion and transport model of moiré-localized IEs at different twist angles.

Task 3: Excitation-power dependent PL spectra of IEs will be obtained to investigate the effect of exciton-exciton interaction to IE energy.

Task 2: The study of opto-electronics, especially for excitonic states, will be performed by micro-photoluminescence (m-PL) and contrast reflectance techniques in gated samples, which has been widely

used in UFSCAR.

Task 4: The investigations of valley g-factors for the exciton Zeeman effect under applied magnetic fields, as well as the effect of the doping, strain and electric fields, will be investigated using the magneto-PL facility at UFSCAR

Task 5: The study of moiré phonons will be performed using Raman spectroscopy at UFSCAR

Task 6: The study of the magnetic properties of twisted 2D heterostructures will be performed by temperature dependent Raman spectroscopy and polarized resolved SHG and MOKE in Brazil. We will investigate proximity effects in hBN/FM2D/TMD/hBN devices (FM2D is the ferromagnetic/antiferromagnetic material) under doping and applied electric fields.

Building a theoretical model for quasi-particles and excitons in twisted bilayers is a very challenging task. We will collaborate with Andrey Chaves (Universidade Federal do Ceará) for theoretical support for the research proposal.

WP3- Theoretical (Andrey)...

WP4: Proximity exchange effects in TMDs by van der Waals magnetic materials.

The excitonic properties and approximate band structures in twisted bilayers having 2D magnets will be investigated experimentally. These studies will also have theoretical support of Andrey Chaves (UFC). Specifically, we are interested to investigate the proximity effect of magnetic layers on the moiré excitons in twisted vdW heterostructures.

1.3 Expected Outcomes

This research project will allow the development of novel materials and devices, with high impact on technology content, new functionalities, tailored properties and improved performances. It is of strategic interest in order to increase the industrial competitiveness and sustainable development in the field of emerging 2D (magnetic) materials, gain insight in the connections between sample preparation and fundamental properties, and to develop the technology for exploitation in novel optoelectronic/spintronics applications.

The proposal is a novel approach to the engineering of desired VdW optical and magnetic properties of twisted heterostructures for fundamental physics and promising applications in optoelectronics and spintronics. The programme of work will return fundamental understanding of these emerging materials that are likely to be exploited in advanced optoelectronics and spintronic devices using 2D magnets. The research in this area will therefore raise the South Korea/Brazilian profile in a field that is currently attracting considerable international interest. It benefits from the proposers' previous track record in semiconductors and established contacts with leading EU and world-wide laboratories.

2. Project Schedule and Milestone

2.1. Annual Schedule

Year	Objective	Description
2023	Preparation of vdW heterostructures	Exfoliation and dry transfer of high quality TMDs to form the vdW heterostructures and IEs
	Optical investigation of moire IEs	Optical investigation on exciton-exciton interaction and quantum yield of IEs
2024	Investigate correlated electron phenomena	Study the effect of doping on magnetic properties of 2D magnets by measuring low-temperature Raman spectroscopy, SHG and photoluminescence
	Study of proximity effects	The study of the magnetic properties of twisted 2D heterostructures

2.2. Project Milestone

Work Plan	1 st year				2 nd year			
	1/4	2/4	3/4	4/4	1/4	2/4	3/4	4/4
Preparation of vdW heterostructures								
Optical characterization								
Theoretical modeling								
Researcher exchanges and seminar								

3. Research Capacity - PI and Institute

Sungkyunkwan University (SKKU) is a world-class institution and a leading university with strong academic and research performance. SKKU ranks 97 and 122 in QS and THE World University Rankings, respectively, which is 10th in Asia and 1st in private universities in Korea, and draw 450 M\$ in research funding in 2021. SKKU has the partnership agreements with around 700 international universities in 71 countries. Prof. Kim's lab in SKKU specializes in nano optical spectroscopy imaging of nano materials and recent research interest was visualization and manipulation of light-emitting excitons and their interactions in quantum semiconductors to find their applications as future optoelectronic devices. Representatively, he published the results of identification exciton complexes in 2D semiconductors [Nanoscale **43**, 4843 (2014), 252 citations; ACS Nano **10**, 2399 (2016), 168 citations; Nano Letters **18**, 4523 (2018)], tunable exciton funnelling [Nano Letts. **21**, 43 (2021)], suppression of non-radiative exciton-exciton annihilation in 2D TMDs [Nat. Commun. **12**, 7095 (2021)] and the modulation of anisotropic optical electrical properties of 2D ReS₂ by electron doping [ACS Nano **13**, 14437 (2019); ACS Nano **15**, 13770 (2021)]. He has been conducting a series of NRF research funds related to optical properties of 2D semiconductors and was awarded of Samsung Research Funding Grant as PI for 2018-2021. International collaboration has been the key component of his successful research accomplishments, of which partners are, to name a few, Ajay Sood (IISc), Tony Low (U. Minnesota), Alexey Chernikov (Tech. U. Dresden), T. Taniguchi (NIMS), Andrey Chaves (U. Fed. Ceará). Especially, Prof. Kim already started a research collaboration with Prof. A. Chaves, who is a co-PI of this proposal and published a paper together [Nat. Commun. **12**, 7095 (2021)]. Prof. Kim's lab is equipped with state-of-art optical imaging and spectroscopy instruments along with the proper setup for exfoliation and dry-transfer to prepare the hetero van der Waals structures. Prof. Kim's overall capability of performing the relevant research proposed here have been proven by previous many research outcomes.

4. Research Exchange Plans

4.1. Background and Necessity of Collaboration

From a generic perspective the project targets to start a long-standing scientific cooperation between leading research partners in the South Korea and Brazil to investigate emergent physical phenomena in 2D materials/heterostructures and also for the engineering of their physical properties for the next generation of optoelectronic devices. To this end, we have devised the following technical objectives: (1) Develop procedures for preparation of high-quality TMD heterostructures/devices. (2) Investigate the interplay of stacking angles, substrates and applied gate voltage on the physics of interlayer and intralayer exciton properties of different VdW heterostructures, on one hand, and magneto-optical valley properties, on the other hand; The proposal is an approach to the engineering of desired VdW sample/device properties based on

n methods and complementary facilities that have a high probability of success. The research program should return fundamental understanding of these emerging 2D VdW heterostructures that are likely to be exploited in energy and optoelectronics. The project will contribute to scientific and technology profiles of the South Korea and Brazil contributing to the development of learning and mastering of highly-specialized skills needed for future use of materials in applications.

We propose a variety of exchange activities of research teams with complementary facilities available in the South Korea and Brazil including sample preparation of van der Waals heterostructures, optical measurements of vdW heterostructures/devices, seminars, and meetings to discuss new ideas which are relevant to define new studies and material/device exchanges. Two visits between the institutions are planned for the teams of Brazil and South Korea. These exchanges will allow us to investigate new samples/devices and to perform measurements of complementary optical properties of 2D semiconductor heterostructures/devices in both laboratories. This project will also be important to start a long-term collaboration and to initiate new joint research projects such as Fapesp-Brazil (Thematic grants) / grants from South Korea agencies. The complementary expertises of our research groups combined with unique instrumentation facilities of each institution (different techniques of nano-spectroscopy in South Korea and sample preparation and magneto-optics in Brazil) and the novelty of the proposed project will certainly result in joint publications in high-impact journals.

4.2. Research Capacity - FPI and Institute

The Federal University of São Carlos team is well known for different electron microscopy facilities (TEM, STEM and etc), optical facilities such as micro-Raman Spectroscopy, photoluminescence and magneto-photoluminescence under high magnetic fields to investigate structural, optical and transport properties of different nano-systems (Phys. Rev. Lett. **104**, 086401 (2010); Phys. Rev. B **43**, 4843 (1991)). Prof. Gobato has also acquired experience in the field of photonics and also spintronics (Phys. Rev. B **73**, 155317 (2006), J. Appl. Phys. **106**, 023518 (2009) (Nano Letters **19**, 82 (2019)). More recently, she started to investigate the optical properties of 2D vdW materials grown by van der Waals Epitaxy and magneto-optical properties of exfoliated vdW heterostructures/gated devices (Nanoscale **10**, 4807 (2018)) (Nanoscale **13**, 15853 (2021), Nanoscale **14**, 5758 (2022), Phys. Rev. Appl. **16**, 64055 (2021), <https://arxiv.org/abs/2204.01813v1>).

Ingrid D. Barcelos is a group leader in the microscopy sample laboratory (LAM) at Brazilian Synchrotron Light Laboratory (LNLS). She has large experience in the sample preparation process of different nano-systems: 1D and 2D structures, vdW heterostructures and also optical characterization and e-beam lithography. (Nano letters **14**, 3919 (2014)) (Nanoscale **7**, 11620 (2015)) (Nanoscale **12**, 13460 (2020)) (ACS Photonics **8**, 3017 (2021)) (2D Materials **9**, 035007 (2022)). In addition, she has experience in synchrotron infrared nanospectroscopy to investigate vibrational properties, polaritons and nanophotonics devices in 1D and 2D materials (ACS Photonics **5**, 1912 (2018)) (Nanoscale **11**, 21218 (2019)) (Nano Letters **19**, 708 (2019)) (Advanced Optical Materials **8**, 1901091 (2020)) (Nature communications **12**, 1 (2021)).

The group of Andrey Chaves...

4.3 Workload Distribution and Implementation Plan

Due to the importance of the proposed programme of work among the Sungkyunkwan University, UFSCAR and LNLS, this work will attract postgraduate students of these institutions, and contribute to their training in both institutions. The development of new materials such as different 2D materials, 2D magnets and vdW heterostructures/devices will be challenging for students/researchers; it is an emerging direction with increasing interest in devices for optoelectronics based on 2D materials. These areas are likely to benefit from engineered material/device properties and will be of considerable interest to industrial companies of both countries. The investment in this project and the existing infrastructure will provide many exciting possibilities for the development of novel research directions in nanoscience and nanotechnology over several years, and will underpin new projects on novel 2D semiconductor/ heterostructures for

optoelectronics.

Particularly, we have planned at least 2 visits for the Brazilian teams (or South Korea team) to the South Korea (to Brazil) which will contribute to complementary studies for the research grants from Brazil (FAPESP) and the South Korea. The main objectives of these visits would be to discuss the experiments, design of new samples/devices, prepare samples, to perform complementary experiments, present seminars for researchers and students, discuss new results, draft publications and discuss long term joint research projects. In addition, we plan to prepare vdW heterostructures, carry out nano-optical and magneto-optical measurements using the complementary facilities of both universities.

5. Budget (Korean Side)

Category	Year			1 st year	2 nd year	Total	
	Category						
Direct Expenses (K=E+J)	Personnel Expenses	Internal	Unpaid				
			Paid (A)	Cash			
				In-kind			
		External	Unpaid				
			Paid (B)	Cash			
				In-kind			
	Administrative Assistant(C)						
	Student Assistant(D)						
	Sub Total (E=A+B+C+D)						
	Facility & Equipment (F)	Cash	General				
			Integrated				
		In-kind					
	Activities(G)						
	Materials(H)						
Research Allowances(I)							

	Sub Total (J=F+G+H+I)			
	Indirect Expenses(L)			
	Total Expenses(M=K+L)			

※ Unpaid costs for student assistant should be filled in 'unpaid external personnel'. (On the e-R&D system as well)

국제기관간MOU지원사업 과제신청서

1. 요약서

세부사업명	양자연구교류지원사업(브라질)			
국문과제명	적층된 반데르발스 이중구조의 모아레 패턴이 물리적 특성에 미치는 영향 연구			
영문과제명	Effect of Moire pattern on physical properties of twisted van der Waals heterostructures			
연구유형	연구자 교류			
한국 측 연구책임자	성명	김정용	소속기관	성균관대학교
상대측 연구책임자	성명	Yara Galvao Gobato	소속기관	Federal University of Sao Carlos

1.1 연구 목표

신흥 반데르발스 이중 구조의 학술적인 이해와 이를 기반으로 하는 소자의 응용 개발에 기여하기 위해 공동 연구 협력을 수행하고자 함. 특정 세부 연구 목표는, (1) 고품질 2D 시료와 소자의 제작 및 구현. (2) 엑시톤-엑시톤 상호작용 및 층간엑시톤 (interlayer exciton: IE)의 양자효율에 대한 모아레 패턴의 영향을 연구함. (3) 다양한 적층 비틀림 각도를 갖는 이러한 vdW 이중 구조의 전자 및 광학 특성을 연구함. (4) 얻은 결론을 새로운 vdW 장치를 설계/모델링하는데 적용함. (5) 모아레 IE 기반 소자의 프로토타입을 개발하고 테스트 수행 (6) 향후 공동연구 사업 및 장기적인 협력을 위한 기회를 탐색함.

1.2 연구 내용

반 데르 발스(vdW) 이중 구조는 독특한 광학적, 전자적, 기계적 및 자기적 특성으로 인해 흥미로운 시스템이며 특히 전이금속 디칼코게나이드(TMD) 물질의 단층을 기반으로 하는 이중구조에 초점을 맞추고 있다.¹⁻⁴¹ 단층 TMD물질은 두개의 동등하지 않은 $\pm K$ 벨리에서 직접 밴드 갭을 갖는 반도체 물질이고 강한 면외 (out-of-plane) 양자 구속, 면내 (in-plane)의 큰 캐리어 유효 질량 및 작은 유전 상수로 인해 수 백 meV 에 달하는 강한 속박 에너지로 엑시톤이 형성된다.^{4,7} 강한 스핀-궤도 커플링과 반전 대칭의 깨짐은 전자와 정공 상태의 스핀 축퇴를 분리하여 오른쪽($\sigma+$) 및 왼쪽($\sigma-$) 원형 편광된 광으로 각각의 $\pm K$ 벨리에 작용함으로써 스핀 및 벨리 자유도를 제어할 수 있다.^{4,7,12} 뿐만 아니라 외부 자기장 하에서 벨리 Zeeman 분리나 자기장 유도 벨리 편광과 같은 흥미로운 새로운 현상 또한 관찰할 수 있다.^{7,15} 이러한 2D 물질들의 엑시톤 물리학은 수직으로 적층되어 vdW 이중 구조를 형성할 때 훨씬 더 다양해진다.^{6-9,11,26,35,36} 실제로 두 개의 원자적으로 얇은 vdW층이 함께 수직으로 적층될 때, 층 사이의 원자 정렬은 주기적인 변화가 나타나는 모아레 초격자/패턴으로 알려진 새로운 유형의 평면 내 초격자를 만든다.^{22,35,36,39} 이러한 모아레 초격자의 주기는 격자 상수 불일치와 두 층 사이의 비틀림 각도에 의해 결정되며 대부분의 경우 이러한 vdW 이중 구조는 type-II 밴드 정렬과 적층된 층 사이의 비틀림 각도에 따라 변화하는 모아레 초격자/패턴에 중대한 효과를 미친다.^{8,28,35,36} 이중구조에서의 TMD 재료간의 강한 쿨롱 상호작용은 다른 TMD 층에 위치한 전자 및 정공과 함께 모아레 층간엑시톤 (IE)을 형성한다.^{35,36,39} 또한, 전자(또는 정공) 파동함수가 두 층에 걸쳐 분포하는 이중구조도 있으며, 이러한 엑시톤을 하이브리드 엑시톤(hybrid exciton)이라 한다.^{13,14,35,36} 이러한 하이브리드 엑시톤은 두 층 사이의 전도대 또는 가전사대의 에너지가 서로 가까울 때 나타난다.^{13,14} 이중 구조에서는 두 층이 동일한 칼코겐 원자를 공유하는지 여부에 따라 거의 동등(near-commensurate)하거나 동등하지

않은(incommensurate) 두 가지 유형이 있다.^{28,35,36} 거의 동등한 경우 (예: $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$), 각각의 격자 상수는 매우 유사하여 넓은 범위의 모아레 주기($\sim 1-100$ nm)와 모아레 슈퍼셀 밀도를 가진다. 서로 다른 칼코겐 원자 (예: $\text{MoS}_2/\text{WSe}_2$)를 가진 두개의 TMD 단층으로 구성된 이중 구조의 경우, 격자 상수가 크게 다르며($\sim 4\%$) 가장 큰 모아레 슈퍼셀은 대략 ~ 8 nm에 이른다.^{35,36} 이러한 격자 동등함의 여부는 비틀림 각도에 의존하는 광학적 특성에 중요한 영향을 미칠 뿐 아니라 더 강한 in-plane 속박이 예상될 수 있으며 층내엑시톤(intralayer exciton) 및 IE의 광학적 특성에 더 중요한 변화를 초래할 수 있다.

IE는 운동량 불일치가 가장 적은 적층 각도인 0° (AA 적층) 및 60° (AB 적층)에서 발광 재결합이 주로 관찰되며 단층 엑시톤 층내 광발광(photoluminescence)에 비하여 월등히 적색 이동된 에너지에서 뚜렷한 광발광이 나타난다. IE는 높은 결합 에너지($>100\text{meV}$)를 가지므로 실온에서 안정적이며 인가된 전기장에 의하여 해리 되지 않는다.^{6-9,35,36,39} 이는 IE의 쌍극성 특성으로 인한 고온 엑시톤 응축 및 벨리-스핀 물리학 출현 같은 상호작용 기반 전자 현상을 조사할 수 있는 유망한 시스템이다.^{35,36,39} IE를 공간적으로 국소화할 수 있는 모아레 패턴과 in-plane 전위 변조 크기는 vdW 층간의 상대적인 비틀림 각도로 제어할 수 있으며 결과적으로 광학적 특성에 상당한 영향을 미친다. 이중구조의 비틀림 각도는 일반적으로 편광 분해 이차 고조파 발생 (SHG)에 의해 측정할 수 있다. IE가 갖는 고유의 전기 쌍극자로 인해 에너지 고유 상태도 전기장에 의해 제어될 수 있으며, 이는 고온 엑시톤 응축^{10,39}, 단광자 방출^{11,18} 및 벨리-스핀 광전자공학^{12,39}을 조사할 흥미로운 기회를 열어준다. 모아레 초격자에 국소화된 층간 엑시톤 사이의 상호작용 강도는 공간적 분리에 의존하기 때문에 이러한 입자들의 유효 g-인자는 비틀림 각도에 민감하게 의존한다. 특히, 비틀림 각도가 0° 에 가까운 경우의 $\text{WSe}_2\text{-MoSe}_2$ 이중 구조의 경우 약 +6의 유효 g-인자가 관찰되는 반면, 54° 에 가까운 비틀림 각도의 경우 일반적으로 g ~ -15 값이 관찰된다.^{9,15,16,35,36} 이 값은 개별 단층 TMD에서 관찰된 g-인자와 매우 다르다 (g ~ -4).^{12,15} 두 경우 모두 이러한 값들은 단층 및 이중층 물질들의 전도대와 가전도대의 각 운동량의 특성을 설명하는 제 1원리 기법 (first principle method)으로 설명할 수 있다. 그러나 이러한 대략적인 추정치로부터 관찰된 편차의 세부 사항, 특히 다양한 엑시톤-엑시톤 상호작용의 영향은 고려되지 않았다. 이 과제 제안서에서 특히 흥미로운 것은 신중히 선택된 소재들의 조합과 비틀림 각도에서 층내 및 층간 엑시톤의 엑시톤 밴드가 혼성화 (hybridization)되어 모아레 초격자 효과의 공명 향상을 가져올 수 있다는 점이다.^{13,14,36} 혼성화 강도는 0° 및 60° 부근의 비틀림 각도를 제어하는 방식으로 조정 할 수 있다.^{13,14} 혼성화의 결과로 반사율 측정 스펙트럼(Reflection contrast: RC)에서 추가적인 엑시톤 특성이 예상되며, 이는 모아레 초격자 효과 때문에 혼성화 엑시톤에 해당하는 미니밴드가 형성됨에 따라 나타날 것으로 예상할 수 있다.^{13,14} 이 효과는 이중 구조가 거의 정렬되어 중첩되었을 경우 전자 상태의 공명 혼합으로 인해 엑시톤 분산 및 광학 스펙트럼에 대한 이중 구조의 모아레 패턴 효과가 향상된다. 세 개의 밝은 공명 혼성화된 엑시톤이 이론적으로 예측되었고 0° 및 60° 비틀림 각도 근처에서 층내 엑시톤이 에너지적으로 근접함을 실험적으로 관찰된 바 있다.^{13,14} 또한, WS_2/WSe_2 와 같이 칼코겐화물 원자가 상이한 적층 구조는 격자 불일치가 클수록 더 강한 국부 변형 및 층간 간격 변화를 일으키기 때문에 더 깊은 모아레 전위를 나타낼 것으로 예상된다.^{35,36} 따라서 이러한 예측은 게이트 전압을 조절하는 방식으로 $\text{MoSe}_2/\text{WS}_2$ 또는 WS_2/WSe_2 이중 구조와 같은 다양한 이중 구조에서 층 내 및 IE의 광학 및 자기 광학 측정의 매우 흥미로운 대상이다.³⁶

이러한 vdW 이중 구조의 물리적 특성에 대한 모아레 패턴의 영향과 관련된 몇 가지 열린 질문들이 있다.^{35,36} 예를 들어, 엑시톤들이 모아레 슈퍼셀 내에 국한되어 있는지 여부를 아는 것은 제어 가능한 chiral 특성을 가진 양자 광원과 같은 양자 정보 과학을 위한 응용에 큰 영향을 미치는 중요한 근본적인 물음이 될 수 있다.^{11,18,35,36} 또한 캐리어 밀도와 전기장이 게이트 전압에 의해 제어될 수 있는 게이트 vdW 이중 구조를 광학 분광법으로 조사된 전자 위상을 조사하는 것 또한 큰 관심이 있다.³⁶

TMD 이중구조는 대역폭과 상호작용 강도가 모두 광범위한 전례 없는 이점을 제공하므로 Hubbard 모델을 시뮬레이션하기 위한 새로운 플랫폼으로 제안되어왔다.^{36,41} 게다가, 최근에 이차원 강자성 vdW 재료들 또한 차세대 스핀트로닉스 소자를 위한 효과적인 building blocks 으로 유망한 것으로 나타났다.^{33,37-40} 특히, 2차원 강자성체(ferromagnets)와 TMD를 결합 함으로서 자기 이온의 호스팅 없이 2D재료들을 자성체로 만들기 위해 자기 근접 교환 효과(magnetic proximity exchange effects)를 이용할 수 있는 장점이 있다.^{34,0} 또한, 상부에 적층된 강자성 단일층과 TMD 단일층의 근접 교환은 비틀림 각도나 게이트 전압을 적용하여 조정할 수도 있다.⁴⁰ 근접 교환 및 빨리 Zeeman의 상호 작용, 게이트 및 비틀림 각도에 대한 의존도는 적층된 TMD 및 2D 강자성체가 있는 vdW 이중 구조 탐색에 상당한 동기를 부여한다.³⁷⁻⁴⁰ 이러한 연구를 수행함에 있어서 고품질의 샘플을 확보하는 것은 학술적인 연구 및 적용 가능한 응용 연구 모두에 매우 중요한 조건이다. 예를 들어, 모아레 미니 밴드에 기인하는 엑시톤 공명의 미세한 구조는 저품질, 즉 매우 무질서한 모아레 패턴을 갖는 샘플에서는 관찰 할 수 없다.³⁴⁻³⁶ 따라서 육각형 질화붕소(hBN)로 덮거나 (encapsulation) 또는 상대적으로 낮은 비용의 새로운 2D 유전 물질을 hBN대신 사용하는 방식으로 이중 구조의 품질을 개선하기 위한 전략을 개발하는 것이 중요하다. 또한, 비틀린 vdW 이중 구조에서 IE의 양자 수를 개선은 광전자 공학에서 가능한 응용 분야에 중요한 문제이다. 따라서, 우리는 실험적 측정과 층내 및 층간 엑시톤의 새로운 물리적 특성에 대한 이론적 모델링을 통해 고품질의 뒤틀린 이중층의 광학 및 자기에 대한 철저한 조사를 수행하고자 한다. 고품질의 다 층(few-layers) vdW 결정의 모아레 패턴이 비틀림, 불일치, 스트레인 파라미터 변화에 따라 발생하는 엑시톤 현상을 실험적으로 조사하고 이를 설명할 뿐 아니라 조절 및 제어를 위한 다양한 전략을 조사하는 데 필요한 다중 스케일 이론 모델을 구축하려 한다. 이는 성균관대학교와 상카를로스연방대학교 (UFSCar), 브라질 싱크로트론연구소(LNLS)의 상호 보완적인 실험 시설과 UFC(Universidade Federal do Ceará)의 이론 및 계산 전문 지식의 고유한 조합을 기반으로 할 것이다.

세부 연구 목표:

- (a) 다양한 종류의 소재 구성 및 적층 각도를 갖는 고품질 2D 이중구조/소자의 제작.
- (b) 모아레 반 데르 발스 이중 구조의 나노 분광 특성 측정.
- (c) vdW 전계 효과 장치에서 층간 엑시톤의 광특성 및 자기 광특성에 대한 게이트 전압 및 적층 각도의 영향을 연구.
- (d) 저온 라만 분광법 및 PL를 측정하여 2D 자성체의 광특성 및 자기특성에 대한 도핑의 영향 연구.
- (e) 적층 hBN/2D 자성체/TMD/hBN 이중 구조의 자기 근접 효과 연구.

세부 연구내용 (Working Project: WP) 및 기관별 역할:

WP1: 샘플 제작

작업 1: 서로 다른 비틀림 각도를 가지는 TMD와 2D 자성체의 다양한 조합으로 구성된 고품질 vdW 이중 구조의 제조를 위한 박리, 건식 전자 및 어닐링 기술은 LNLS 의 Ingrid D. Barcelos 박사 그룹과 공동으로, SKKU 및 UFSCAR 박사/석사 대학원이 동시에 수행한다.

작업 2: 층간 비틀림 각도는 다른 브라질 그룹과 협력하여 편광 종속 SHG 기술에 의하여 측정한다.

WP2- 광 측정 연구

작업 1: 한국에서 나노광학 특성(nano-PL 및 nano-Raman)을 조사한다. IE의 형성을 확인하기 위해 3-350K에서 온도 의존성 나노 PL 및 나노 라만을 수행한다. 또한 여기에너지 의존 PL 연구는 IE의 공진 여기를 찾기 위해 성균관대에서 수행한다.

작업 2: 적층 각도에 대한 엑시톤 PL 수명의 의존성은 SKKU에 있는 시간 분해 TCSPC PL 시스템으로 조사할 것이며 이를 통해 모아레 주기에 대한 IE의 국소화 의존성이 드러날 것이다. 이 정보는 서로 다른 비틀림 각도에서 모아레에 국한된 IE의 확산 및 전송 이론 모델을 개발하는 데 사용된다.

작업 3: IE 에너지에 대한 엑시톤-엑시톤 상호작용의 효과를 조사하기 위해 IE의 여기 에너지 파워 대비 PL 스펙트럼을 얻을 것이다.

작업 4: 엑시톤 상태에 대한 광전자공학 연구는 UFSCAR에서 널리 사용해진 게이트 샘플에서 마이크로 광발광(m-PL) 및 대비 반사율 (RC) 측정 기술에 의해 수행된다.

작업 5: 고 자기장 하에서 엑시톤 Zeeman 효과에 대한 빨리 g-인자 조사와 도핑, 변형 및 전기장의 효과는 UFSCAR의 자기-PL 시설을 사용하여 조사된다.

작업 6: 모아레 포논 연구는²⁶ UFSCAR에서 라만 분광기를 사용하여 수행한다.

작업 7: 뒤틀린 vdW 이중 구조의 자기 특성에 대한 연구는 브라질에서 온도 의존 라만 분광법과 분극 분해 SHG 및 magneto optical Kerr effect (MOKE) 이미징을 통해 수행한다. 우리는 도핑 및 인가된 전기장 하에서 hBN/FM2D/TMD/hBN 장치 (FM2D는 강자성/반강자성 물질을 뜻함)에서 근접 효과를 조사할 것이다. 뒤틀린 이중 층에서 준입자 및 엑시톤에 대한 이론적 모델을 구축하는 것은 전문적인 이론적 지원이 필요한 만큼 Universidade Federal do Ceará 의 Andrey Chaves 교수 그룹이 수행함.

WP3- vdW 이중 적층구조에서의 모아레 준입자 이론 모델 개발

모아레 패턴의 초격자 셀이 매우 커 vdW 이중구조의 DFT 계산을 위하여, 본 사업에서는 계산적으로 훨씬 저렴하면서도 모아레 속박의 주요 특징을 고려하는 연속체(continuum) 모델을 통한 이론 모델을 개발하고자 함. 이 작업은 두 단계로 수행됨.

작업 1: 가능한 모든 적층 순서를 고려한 다양한 vdW 이중구조의 전자 상태 DFT 계산. 계산의 단결정 특성으로 인해 작은 단위 셀을 정의할 수 있으므로 계산이 용이함.

작업 2: 주어진 동중/이중 구조에서 모아레 패턴을 구성하는 다양한 국부적 적층 순서 식별. "패칭" DFT는 국부적 적층 순서의 각 영역에 해당하는 전자 상태를 판명하여 전체 평면에 걸쳐 효과적인 모아레 포텐셜 프로파일을 생성할 수 있음. 이러한 주기적인 모아레 포텐셜의 존재를 고려하는 연속체 모델에서 슈뢰딩거 방정식을 풀면 모아레 준입자(모아레 전자, 정공, 엑시톤 및 포논) 밴드 구조가 나타나며, 그 특성을 실험적 결과에 적용할 예정임.

WP4: vdW 자성재료에 의한 TMD의 근접 교환 효과 연구

2차원 자성체로 이루어진 뒤틀린 이중 적층에서의 엑시톤 특성 및 근사 밴드 구조를 Andrey Chaves 그룹의 (UFC)의 이론적 지원과 함께 실험적으로 조사할 것이다. 특히, 우리는 뒤틀린 vdW 이중 구조에서 모아레 엑시톤에 대한 강자성 층의 근접 효과를 조사하는 데 초점을 맞추고자 한다.

1.3 연구개발에 따른 기대성과

이 연구 과제는 신개념 재료 및 소자의 개발을 가능하게 하여 기술적 혁신, 새로운 기능, 맞춤형 속성 및 향상된 성능등의 큰 파급효과를 가져올 것임. 신형 2D 자성 재료 분야에서 산업 경쟁력과 지속 가능한 소자 개발 가능성을 높이고 시료 구성과 근원적 특성 간의 상관관계 대한 통찰력을 바탕으로 새로운 광전자/스핀트로닉스 응용 활용 기술을 개발하는 것이 전략적 목적이다. 본 사업 제안은 뒤틀린 이중구조의 원하는 VdW 광학 및 자기 특성 엔지니어링에 대한 새로운 시도를 통해 물리학과 광전자공학 및 스핀트로닉스의 유망한 응용을 가져올 것으로 기대한다. 본 과제에서 연구하고자 하는 2D 자성체를 사용하는 광전자공학 및 스핀트로닉스 장치에서 활용될 가능성이 있는 이러한 새로운 재료에 대한 근본적인 이해를 거둘 수 있다. 따라서 이 분야의 연구는 현재 상당한 국제적 관심을 끌고 있으며 한국/브라질의 인지도 또한 높일 것이다. 본 연구의 참여 연구원들의 반도체 분야에서의 이전 성과를 고려하였을 때 본 과제를 통해 주요 EU 및 전 세계 실험실과의 확립된 접촉을 통해 큰 성과와 이득을 가져올 것으로 예상된다.

2. 연차별 연구 목표 및 추진 일정

2.1 연차별 연구 목표

연도	목표	주요내용
2023	vdW 이종구조 시료 제작	vdW 이종 구조 및 IE를 형성하기 위한 고품질 단층 TMD 박리 및 건식 전자
	모아래 IE의 광학적 조사	엑시톤-엑시톤 상호작용 및 IE의 양자 수율에 대한 광학적 조사
2024	상호관련된 전자현상 조사	저온 라만 분광법, SHG 및 PL 을 측정하여 2D 자성체 자기 특성에 대한 도핑의 영향 연구
	근접 효과 연구	비틀린 2차원 이종구조의 자기적 특성 연구

2.2 추진 일정

내 용	1차년도				2차년도			
	1/4	2/4	3/4	4/4	1/4	2/4	3/4	4/4
vdW 이종구조 시료 제작								
광 특성 측정								
이론적 모델링								
연구원 교류 및 세미나								

3. 연구책임자의 연구 역량(한국 측)

성균관대학교(SKKU)는 세계적 수준의 기관이자 강력한 학술 및 연구 성과를 자랑하는 선도적인 대학이다. 성균관대는 QS와 THE World University Rankings에서 각각 97위, 122위를, 아시아에서는 10위, 한국 사립대학에서는 1위로 언급되었으며, 2021년 총 외부연구비 4억 5천만 달러를 유치하였을 뿐만 아니라 71개국 700여 개 국제대학과 파트너십 협약을 맺고 있다. 성균관대 김정용 교수 연구실은 나노 물질의 나노 광학 분광 이미징분야 전문 연구 그룹으로서, 최근 연구 관심 분야는 발광 엑시톤과 양자 반도체에서의 상호 작용을 시각화하고 조작하여 미래 광전자 소자로 응용하는 것이다. 김정용 교수 그룹이 주도한 대표적 관련 연구 결과로서, 2차원 반도체에서 엑시톤 복합체 식별 결과[Nanoscale 43, 4843 (2014), 252회 인용; ACS Nano 10, 2399(2016), 168회 인용; Nano Letters 18, 4523 (2018)], 가변 엑시톤 퍼널링 [Nano Letts. 21, 43 (2021)], 2D TMD에서 비방사성 엑시톤-엑시톤 소멸 억제 [Nat. Commun. 12, 7095(2021)] 및 전자 도핑에 의한 2D ReS₂의 이방성 광학의 전기적 특성의 변조[ACS Nano 13, 14437(2019); ACS Nano, 15, 13770(2021)]등을 발표하였다. 또한, 2D 반도체의 광학적 특성과 관련된 연구재단 과제를 수행하여 왔으며, 2018-2021년 삼성미래기술육성과제를 수상했다. 국제 협력과 공동연구는 그의 성공적인 연구성과의 핵심 구성 요소이며 대표적인 파트너로는 Ajay Sood (IISc), Tony Low (U. Minnesota), Alexey Chernikov (Tech. U. Dresden), T. Taniguchi(NIMS), Andrey Chaves (U. Fed. Ceará)등 이 있다. 특히, 이미 본 제안 과제의 브라질측 공동 연구원인 Adrey Chaves 교수와 함께 주도하여 공동 연구 결과 우수 논문을 발표한 바 있다[Nat. Commun. 12, 7095(2021)]. 김 교수의 연구실은 이종 vdW 구조의 시료 제작을 위한 박리 및 건식 전자 연구시설과 함께 최첨단 광학 이미징 및 분광 장비를 갖추고 있다. 여기서 제안한 관련 연구를 수행하는 김교수 그룹의 전반적인 능력은 이전의 많은 연구 결과로 입증되었다.

4. 국제교류 · 연구 추진계획

4.1 배경 및 필요성

일반적인 관점에서 이 프로젝트는 2D 물질/이종 구조에서 발생하는 물리적 현상을 조사하고 차세대 광전자공학 소자를 위한 특성을 엔지니어링하기 위하여 한국과 브라질의 주요 연구 파트너 간의 장기적인 과학적 협력을 시작하는 것을 목표로 한다. 이를 위해 우리는 다음과 같은 기술적 목표를 고안하였다. (1) 고품질 TMD 이종 구조/소자 제작 기술을 개발한다. (2) 서로 다른 vdW 이종구조의 층간 및 층내 엑시톤 특성에 대한 적층 각도, 기판 및 인가된 게이트 전압의 상호작용을 조사하고 다른 한편으로는 자기-광학 벌리 특성을 조사한다.

제안하는 연구는 임의의 vdW 시료와 소자 특성의 엔지니어링을 목표로 하며, 참여 연구기관의 역량과 인프라를 고려하였을 때 높은 성공 가능성을 암시한다. 이 연구 프로그램은 에너지 및 광전자공학에서 활용될 가능성이 있는 이러한 새로운 2D VdW 이종구조에 대한 근본적인 이해가 필수적이다. 이 프로젝트는 미래의 응용 재료 사용에 필요한 고도로 전문화된 기술의 학습 및 발전에 기여하는 한국과 브라질의 과학 및 기술 프로젝트에 기여할 것이다.

우리는 vdW 이종구조의 샘플 준비, vdW 이종구조 장치의 광측정, 새로운 연구를 정의하고 재료 및 장치들의 교환과 관련한 새로운 아이디어를 논의하기 위해 회의 및 세미나를 포함하여 한국과 브라질에서 사용할 수 있는 연구시설을 갖춘 연구팀의 다양한 교류 활동을 제안한다. 브라질과 한국 두 기관 간의 방문이 계획되어 있으며 이러한 교환을 통해 우리는 새로운 시료와 소자를 분석하고 두 실험실에서 2D 반도체 이종구조/장치의 상호 보완적인 광특성을 측정할 수 있다. 이 프로젝트는 또한 장기적인 협력을 시작하고 새로운 공동 연구 프로젝트를 시작하는 데 중요한 가두보 역할을 할 것이다. 각 기관의 고유한 측정 시설(한국의 나노 분광법과 브라질의 시료 준비 및 자기 광학의 다른 기술)과 결합된 우리 연구 그룹의 상호 보완적인 전문 지식과 제안된 프로젝트의 참신함은 분명히 높은-임팩트 저널에 공동 출판을 초래할 것이다.

4.2 상대국 연구책임자(기관)의 연구 역량

Federal University of São Carlos 의 Gobato 교수 연구진은 다양한 나노 시스템의 구조적, 광학적 및 수송 특성을 조사하기 위해(Phys. Rev. Lett. 104, 086401(2010); Phys. Rev. B 43, 4843(1991)) 고 자기장하에서 마이크로 라만 분광법, 광발광 및 자기 광발광과 같은 다양한 광학 시설들과 다른 여러 현미경 시설(TEM, STEM 등)들로 유명하다. Gobato 교수는 포토닉스 및 스핀트로닉스 분야에서도 경험이 있으며 (Phys. Rev. B 73, 155317 (2006), J. Appl. Phys. 106, 023518 (2009) (Nano Letters 19, 82 (2019)) 최근에는 vdW 에피택시에 의해 성장된 2D vdW 재료의 광학적 특성과 박리된 vdW 이종구조/게이트 장치의 자기 광학적 특성을 조사하였다. (Nanoscale 10, 4807(2018))(Nanoscale 13, 15853(2021), Nanoscale 14, 5758 (2022), Phys. Rev. Appl. 16, 64055 (2021), arxiv.org/abs/2204.01813v1). Ingrid D. Barcelos 박사는 브라질 싱크로트론 광 연구소(LNLS)의 현미경 샘플 연구소(LAM) 그룹의 리더이며 1D 및 2D 구조, vdW 이종 구조 및 광학 특성과 및 전자빔 리소그래피와 같은 다양한 나노 시스템의 샘플 준비 프로세스에 대한 풍부한 경험을 보유하고 있다. (Nano Lett. 14, 3919 (2014)) (Nanoscale, 7, 11620 (2015)) (Nanoscale 12, 13460 (2020)) (ACS Photon. 8, 3017 (2021)) (2D Mater. 9 035007 (2022)) 또한, 1D 및 2D 재료의 진동 특성, 폴라리톤 및 나노 광자 소자를 조사하기 위한 싱크로트론 적외선 나노 분광법에 대한 경험이 있다. (ACS Photon. 5, 1912(2018)) (Nanoscale 11, 21218(2019))(Nano Lett. 19, 708(2019)) (Adv. Opt. Mater. 8, 1901091 (2020)) (Nat. Commun. 12, 1 (2021)). 이론 모델 개발 역할을 수행할 UFC의 Andrey Chaves 교수는 이론적인 응집물질물리 분야, 특히 양자 구속된 엑시톤, 0-2D 반도체 이종구조, 그래핀 및

층상 2D 물질의 전자 및 수송 특성, 초전도체의 와류 물질에 관련하여 매우 우수한 연구결과를 발표하여 왔음.

4.3 상대국과의 역할 분담 및 연구수행 추진체계

성균관대학교, UFSCAR 및 LNLS 간에 기관의 대학원생을 상호 유치하고 두 기관에서의 교육 훈련에 기여할 것이다. 여러 2D 소재, 2D 자성체 및 vdW 이종 구조/소자와 같은 새로운 재료의 개발은 대학원생과 참여 연구원에게 학문적 도전이 될 것이며 이는 2D소재 기반의 광전자공학 소자에 대한 관심이 높아짐에 따라 떠오르는 추세이다. 이러한 영역은 엔지니어링된 소재/소자 속성의 장점과 함께 양국의 관련 산업에 상당한 관심이 될 것이다. 이 프로젝트와 더불어 기존 인프라에 대한 투자로 인해 수년에 걸쳐 나노 과학 및 나노기술의 새로운 연구 방향을 개발하기 위한 많은 흥미로운 가능성을 제공할 것이며 광전자공학을 위한 새로운 2D 반도체/이종구조에 대한 새로운 프로젝트를 뒷받침할 것이다.

우리는 한국과 브라질 양 연구팀의 상호 방문을 최소 2회 계획하여 상호 보완 연구를 수행할 예정이다. 이러한 방문의 주요 목적은 실험에 대한 논의, 새로운 시료/장치 설계, 시료 준비, 보완 실험 수행, 연구원과 대학원생을 위한 세미나 개최, 새로운 결과에 대한 논의, 논문 초안의 작성 및 장기 공동 연구 프로젝트에 대해 논의하는 자리가 될 것이다. 또한, 우리는 vdW 이종구조를 제작비하고 두 기관의 시설을 사용하여 나노 광학 및 자기 광학 측정을 수행할 계획이다.

5. 연구비 총괄표(한국 측)

(단위 : 천원)

항목	비목		년도		1차년도	2차년도	합계	
			미지급	지급				
직접비	인건비	내부 인건비	미지급	현금	20304	20304	40,608	
			지급 (A)	현물			0	
		외부 인건비	미지급	현금			0	
			지급 (B)	현물			0	
		연구지원인력인건비(C)						0
		학생인건비(D)				12000	12000	24,000
	소 계 (E=A+B+C+D)				22152	22152	44,304	
	연구시설·장비비(F)	현금	일반	통합관리			0	
			현물				0	
		연구활동비(G)				12000	12000	24,000
	연구재료비(H)						0	
	연구수당(I)				4000	4000	8,000	
	소 계 (J=F+G+H+I)				16000	16000	32,000	
직접비 소계 (K=E+J)				28000	28000	56,000		
간접비(L)				1960	1960	3,920		
연구비 총액(M=K+L)				29,960	29,960	59,920		

5. 참고문헌

1. A.K. Geim, I. V. Grigorieva, Van der Waals heterostructures, Nature, 499 (2013), 419. <https://www.nature.com/articles/nature12385>
2. Chernikov, A. et al. Exciton binding energy and non hydrogenic Rydberg series in monolayer WS₂. Phys. Rev. Lett. 113, (2014).
3. Huang, B. et al. Emergent phenomena and proximity effects in two-dimensional magnets and heterostructures. Nat. Mater. 2020 1912 19, 1276–1289 (2020).
4. Mueller, T. & Malic, E. Exciton physics and device application of two-dimensional transition metal dichalcogenide semiconductors. npj 2D Mater. Appl. 2018 21 2, 1–12 (2018).
5. K. S. Novoselov, A. Mishchenko, A. Carvalho, A. H. Castro Neto, 2D materials and van der Waals heterostructures, Science , 353 (2016)
6. Rivera, P. et al. Interlayer valley excitons in heterobilayers of transition metal dichalcogenides. Nat. Nanotechnol. 2018 1311 13, 1004–1015 (2018).
7. Koperski, M. et al. Optical properties of atomically thin transition metal dichalcogenides: observations and puzzles. Nanophotonics 6, (2017).
8. Mak, K. F. & Shan, J. Opportunities and challenges of interlayer exciton control and manipulation. Nat. Nanotechnol. 2018 1311 13, 974–976 (2018).
9. Nagler, P. et al. Giant magnetic splitting inducing near-unity valley polarization in van der Waals heterostructures. Nat. Commun. 2017 81 8, 1–6 (2017).
10. Wang, Z. et al. Evidence of high-temperature exciton condensation in two-dimensional atomic double layers. Nat. 2019 5747776 574, 76–80 (2019).
11. Yu, H., Liu, G.-B., Tang, J., Xu, X. & Yao, W. Moiré excitons: From programmable quantum emitter arrays to spin-orbit-coupled artificial lattices. Sci. Adv. 3, e1701696 (2017).
12. Arora, A. Magneto-optics of layered two-dimensional semiconductors and heterostructures: Progress and prospects. J. Appl. Phys. 129, 120902 (2021).
13. Alexeev, E. M. et al. Resonantly hybridized excitons in moiré superlattices in van der Waals heterostructures. Nat. 2019 5677746 567, 81–86 (2019).
14. Ruiz-Tijerina, D. A. & Fal'ko, V. I. Interlayer hybridization and moiré superlattice minibands for electrons and excitons in heterobilayers of transition-metal dichalcogenides. Phys. Rev. B 99, 125424 (2019).
15. Wo^oniak, T., Faria Junior, P. E., Seifert, G., Chaves, A. & Kunstmann, J. Exciton g factors of van der Waals heterostructures from first-principles calculations. Phys. Rev. B 101, (2020).
16. Deilmann, T., Krüger, P. & Rohlfling, M. Ab Initio Studies of Exciton g Factors: Monolayer Transition Metal Dichalcogenides in Magnetic Fields. Phys. Rev. Lett. 124, (2020).
17. Chen, S. Y. et al. Luminescent Emission of Excited Rydberg Excitons from Monolayer WSe₂. Nano Lett. 19, 2464–2471 (2019).
18. Seyler, K. L. et al. Signatures of moiré-trapped valley excitons in MoSe₂/WSe₂ heterobilayers. Nat. 2019 5677746 567, 66–70 (2019).

19. Alden, J. S. et al. Strain solitons and topological defects in bilayer graphene. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 110, 11256–11260 (2013).
20. Yoo, H. et al. Atomic and electronic reconstruction at the van der Waals interface in twisted bilayer graphene. *Nat. Mater.* 2019 185 18, 448–453 (2019).
21. Zhang, C. et al. Interlayer couplings, Moiré patterns, and 2D electronic superlattices in MoS₂/WSe₂ hetero-bilayers. *Sci. Adv.* 3, (2017).
22. McGilly, L. J. et al. Visualization of moiré superlattices. *Nat. Nanotechnol.* 2020 157 15, 580–584 (2020).
23. Zhang, X. et al. Phonon and Raman scattering of two-dimensional transition metal dichalcogenides from monolayer, multilayer to bulk material. *Chem. Soc. Rev.* 44, 2757–2785 (2015).
24. Liang, L. et al. Low-Frequency Shear and Layer-Breathing Modes in Raman Scattering of Two-Dimensional Materials. *ACS Nano* 11, 11777–11802 (2017).
25. Lin, K.-Q. et al. Large-Scale Mapping of Moiré Superlattices by Hyperspectral Raman Imaging. *Adv. Mater.* 33, 2008333 (2021).
26. Parzefall, P. et al. Moiré phonons in twisted MoSe₂-WSe₂ heterobilayers and their correlation with interlayer excitons. *2D Mater.* 8, 035030 (2021).
27. Wu, J. Bin et al. Interface Coupling in Twisted Multilayer Graphene by Resonant Raman Spectroscopy of Layer Breathing Modes. *ACS Nano* 9, 7440–7449 (2015).
28. Holler, J. et al. Low-frequency Raman scattering in WSe₂ - MoSe₂ heterobilayers: Evidence for atomic reconstruction. *Appl. Phys. Lett.* 117, 013104 (2020).
29. Puretzy, A. A. et al. Low-Frequency Raman Fingerprints of Two-Dimensional Metal Dichalcogenide Layer Stacking Configurations. *ACS Nano* 9, 6333–6342 (2015).
30. Huang, S. et al. Low-Frequency Interlayer Raman Modes to Probe Interface of Twisted Bilayer MoS₂. *Nano Lett.* 16, 1435–1444 (2016).
31. Maity, I., Naik, M. H., Maiti, P. K., Krishnamurthy, H. R. & Jain, M. Phonons in twisted transition-metal dichalcogenide bilayers: Ultrasoft phasons and a transition from a superlubric to a pinned phase. *Phys. Rev. Res.* 2, 013335 (2020).
32. A. Chaves et al., Bandgap engineering of two-dimensional semiconductor materials, *npj 2D Materials and Applications* 4, 29 (2020).
33. Q. H. Wang et al, The Magnetic Genome of Two-Dimensional van der Waals Materials, *ACS Nano* 16, 5, 6960–7079 (2022).
34. Yongjun Lee et al, Boosting quantum yields in two-dimensional semiconductors via proximal metal plates, *Nat Commun* 12, 7095 (2021)
35. Jiang et al., Interlayer exciton formation, relaxation, and transport in TMD van der Waals heterostructures, *Light: Science & Applications* (2021) 10:72
36. Di Huang et al Excitons in semiconductor moiré superlattices, *Nature Nanotechnology* 17, (2022) 227
37. X. Jiang et al., Recent progress on 2D magnets: Fundamental mechanism, structural design and modification, *Appl. Phys. Rev.* 8, 031305 (2021).
38. S. Zhang, R. Xu, N. Luoc and X. Zou, Two-dimensional magnetic materials: structures, properties and external controls, *Nanoscale* 13, 1398 (2021).
39. K. F. Mak and J. Shan, Opportunities and challenges of interlayer exciton control and manipulation, *Nature Nanotechnology* 13, 974 (2018).
40. Y. Tang et al., Van der Waals heterostructures for spintronics and opto-spintronics, *Nature Nanotechnology* 16, 52 (2021). DOI: <https://doi.org/10.1038/s41565-021-00936-x>
41. Tang et al, Simulation of Hubbard model physics in WSe₂/WS₂ moiré superlattices, *Nature* 579, 353 (2020).