

Streszczenie

W ostatnich latach dwuwymiarowe (*ang. two-dimensional (2D)*) kryształy van der Waalsa, takie jak dwuwarstwa grafenu (*ang. bilayer graphene (BLG)*) oraz dichalkogenki metali przejściowych (*ang. transition metal dichalcogenides (TMDCs)*), ukazały się jako obiecujące platformy do badania nowych zjawisk fizycznych w skali atomowej. Dzięki unikalnym właściwościom elektronicznym, optycznym i mechanicznym materiały te oferują istotny potencjał dla rozwoju technologii kwantowych. Jednym z kluczowych, choć wciąż nie do końca poznanych aspektów tych materiałów, są efekty wielociałowe — a w szczególności ich wpływ na odpowiedź optyczną. Niniejsza rozprawa rozwija i rozszerza teoretyczne możliwości modelowania oddziaływań elektron–elektron w materiałach dwuwymiarowych, koncentrując się na formowaniu i ewolucji neutralnych oraz naładowanych kompleksów ekscytonowych w dwuwymiarowych gazach elektronowych.

W pierwszej części pracy analizowane są właściwości optyczne kropki kwantowej opartej na dwuwarstwie grafenu z niezerową przerwą energetyczną indukowaną zewnętrznym polem elektrycznym. Takie pole przekształca BLG w półprzewodnik o regulowanej przerwie energetycznej, umożliwiając jednocześnie uwięzienie elektronów i dziur w potencjale generowanym przez boczne elektrody. BLG modelowany jest z wykorzystaniem atomistycznego podejścia — przybliżenia ciasnego wiązania (*ang. tight-binding (TB)*) — co pozwala na analizę struktur zawierających ponad milion atomów. Następnie obliczane są elementy macierzowe oddziaływań kulombowskich oraz energie własne stanów elektronowych i dziurowych, a także rozwiązywane jest równanie Bethe-Salpetera (*ang. Bethe-Salpeter equation (BSE)*) zarówno dla ekscytonów neutralnych, jak i naładowanych (trionów). Otrzymane widma emisji i absorpcji pozwalają na szczegółową analizę odpowiedzi optycznej. Pokazano, że ekscytony w takich układach istotnie różnią się od tych znanych z konwencjonalnych półprzewodnikowych kropek kwantowych — ich energie można precyzyjnie modulować za pomocą pola elektrycznego w zakresie od teraherców po daleką podczerwień. Zachowanie spinu, doliny i orbitalnego momentu pędu prowadzi do struktury subtelnej ekscytonów, w której pojawia się pasmo ciemnych stanów niskoenergetycznych. Przeanalizowano również ekscytony naładowane ujemnie, które — w odróżnieniu od trionów w konwencjonalnych półprzewodnikach — wykazują złożoną strukturę subtelną. Ponadto pokazano istnienie jasnych stanów niskoenergetycznych w widmie emisji oraz zaproponowano metodę identyfikacji struktury subtelnej poprzez analizę zmian widm emisji w funkcji temperatury.

W kolejnej części rozprawy zbadano zachowanie kompleksów ekscytonowych w monowarstwach TMDCs pod wpływem silnych pól magnetycznych, ze szczególnym uwzględnieniem wpływu gęstości ładunku i siły pola na formowanie się oraz właściwości magnetoekscytonów. Monowarstwy TMDCs, dzięki silnemu sprzężeniu spin–orbita, złamanej symetrii inwersyjnej oraz prostej przerwie energetycznej w zakresie światła widzialnego, stanowią wyjątkową platformę do badania efektów wielociałowych. Silne pole magnetyczne prowadzi do formowania dyskretnych poziomów Landaua oraz do spinowego i dolinowego rozszczepienia Zeemana, co znacząco modyfikuje oddziaływania światło–materia i wpływa na odpowiedź optyczną materiału. Struktura elektronowa badanych monowarstw została najpierw wyznaczona metodami *ab initio*, a następnie wykorzystana do parametryzacji modelu uwzględniającego zarówno oddziaływanie spin–orbita, jak i efekty pola magnetycznego. Odpowiedź optyczna wyznaczana jest poprzez rozwiązanie równania Bethe-Salpetera dla magnetoekscytonów — związanych stanów elektron–dziura

powstających pod wpływem pola magnetycznego. W szczególności analizowano wpływ gęstości ładunku oraz natężenia pola magnetycznego na spektrum ekscytonowe. Uzyskane wyniki podkreślają istotną rolę efektów wielociałowych w przejściach optycznych w monowarstwach TMDCs w silnych polach magnetycznych.

W ostatniej części pracy przeanalizowano właściwości elektronowe heterostruktury $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$, ze szczególnym uwzględnieniem wpływu pola elektrycznego prostopadłego do warstw na oddziaływania międzywarstwowe oraz charakter pasm energetycznych. Obliczenia *ab initio* wykazały, że badana heterostruktura jest typu II, z minimami pasma przewodnictwa w punktach K i Q oraz maksimami pasma walencyjnego w punktach K i Γ strefy Brillouina. Analiza funkcji falowych Kohn-Shama pozwoliła określić wkłady warstwowe, spinowe oraz orbitalne do struktury pasmowej. Na podstawie tych wyników skonstruowano model ciasnego wiązania, który umożliwia dokładny opis oddziaływań międzywarstwowych. Zbadano wpływ pola elektrycznego na położenie ekstremów dolinowych, co daje możliwość ich kontrolowanej manipulacji. Przeanalizowano również właściwości kropki kwantowej utworzonej w tej heterostrukturze, ze szczególnym uwzględnieniem wpływu pola na widmo energetyczne. Wyniki wskazują, że odpowiednia modulacja pola elektrycznego umożliwia selektywną kontrolę dolinowego charakteru stanów kropki, prowadząc do ich lokalizacji w dolinach K lub Q , co odzwierciedla się w degeneracjach energetycznych i charakterze funkcji falowych. Przedstawione podejście otwiera nowe możliwości sterowania przejściami optycznymi w heterostrukturach materiałów dwuwymiarowych.

Niniejsza rozprawa wnosi istotny wkład w zrozumienie właściwości optycznych materiałów dwuwymiarowych, oferując szczegółowy opis teoretyczny efektów wielociałowych w ekscytonach i trionach. Uzyskane wyniki pokazują, że możliwe jest precyzyjne sterowanie stanami ekscytonowymi za pomocą pól elektrycznych i magnetycznych, oddziaływań międzywarstwowych oraz dolinowych. Wnioski płynące z tej analizy tworzą podstawy dla przyszłych zastosowań w zakresie nowoczesnych urządzeń optoelektronicznych i technologii kwantowych — w tym tranzystorów ekscytonowych, wydajnych źródeł światła czy skalowalnych platform do przetwarzania informacji kwantowej. Zrozumienie skorelowanych stanów w materiałach niskowymiarowych przyczynia się do pogłębienia wiedzy z zakresu fizyki podstawowej oraz dostarcza narzędzi do projektowania nowych materiałów i technologii fotonowych.