

Trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ có chuyển pha kim loại - bán dẫn do tác dụng của áp suất ngoài

Excitonic condensation state formation due to external pressure in semimetal-semiconductor transition materials

Đỗ Thị Hồng Hải^a, Phan Văn Nham^{b,c*}
Do Thi Hong Hai^a, Phan Van Nham^{b,c*}

^aTrường Đại học Mỏ - Địa chất, 18 phố Viên, Đức Thắng, Bắc Từ Liêm, Hà Nội, Việt Nam

^aHanoi University of Mining and Geology, 18 Vien street, Duc Thang, Bac Tu Liem, Hanoi, Vietnam

^bViện Nghiên cứu và Phát triển Công nghệ Cao, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

^bInstitute of Research and Development, Duy Tan University, Da Nang, 550000, Vietnam

^cKhoa Môi trường và Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam

^cFaculty of Environment and Natural Science, Duy Tan University, Danang, 550000, Vietnam

(Ngày nhận bài: 7/5/2022, ngày phản biện xong: 26/5/2022, ngày chấp nhận đăng: 20/6/2022)

Tóm tắt

Giản đồ pha mô tả sự hình thành trạng thái ngưng tụ exciton ở nhiệt độ $T=0$ trong hệ có chuyển pha bán kim loại bán dẫn dưới sự ảnh hưởng của áp suất ngoài được thiết lập thông qua khảo sát tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh trong mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tính tới tương tác điện tử-phonon. Sử dụng gần đúng Hartree-Fock không giới hạn, chúng tôi đã thu được hệ phương trình tự hợp xác định tham số trật tự, từ đó tính được hàm cảm ứng exciton tĩnh bằng gần đúng pha ngẫu nhiên. Kết quả tính số cho thấy, với một giá trị xác định của hằng số tương tác điện tử-phonon, ta luôn tìm thấy trạng thái ngưng tụ exciton khi áp suất ngoài đủ lớn. Khi tăng dần áp suất ngoài, hệ có xu hướng chuyển từ trạng thái ngưng tụ exciton dạng BEC sang trạng thái ngưng tụ exciton dạng BCS khi tăng cường độ tương tác Coulomb. Ở cùng một điều kiện áp suất ngoài và thể tương tác Coulomb, tương tác điện tử-phonon đóng vai trò quan trọng trong việc mở rộng phạm vi tồn tại trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ.

Từ khóa: Giản đồ pha ngưng tụ exciton; cảm ứng exciton tĩnh; mô hình Falicov-Kimball mở rộng; liên kết điện tử-phonon; áp suất ngoài.

Abstract

Ground state phase diagrams of the excitonic condensation in semimetallic-semiconductor transition materials in the influence of the external pressure have been established by analyzing the signatures of the static excitonic susceptibility function in the extended Falicov-Kimball model involving the electron-phonon. Using the unrestricted Hartree-Fock approximation, we have derived a set of self-consistent equations determining the excitonic condensate order parameter and then the static excitonic susceptibility in the framework of the random phase approximation. The numerical results release that for a given electron-phonon interaction, one always finds a stability of the excitonic condensation state as long as the external pressure is sufficiently large. As increasing the external pressure, the BEC excitonic condensate might be formed and then replaced by the BCS excitonic condensation state if the Coulomb interaction is increased. At a given external pressure and Coulomb interaction, electron-phonon interaction also plays an important role in stabilizing the excitonic condensation state in the systems.

Keywords: Phase diagram of the excitonic condensation; the static excitonic susceptibility; the extended Falicov-Kimball model; the electron-phonon coupling; the external pressure.

* *Corresponding Author:* Phan Van Nham, Institute of Research and Development, Duy Tan University, 550000, Danang, Vietnam; Faculty of Nature Science, Duy Tan University, 550000, Danang, Vietnam; Faculty of Environment and Natural Science, Duy Tan University, Danang, 550000, Vietnam

Email: phanvannham@duytan.edu.vn

1. Đặt vấn đề

Exciton là một giả hạt trung hòa về điện, là trạng thái kết cặp của lỗ trống ở vùng hóa trị với điện tử ở vùng dẫn nhờ tương tác Coulomb [1]. Do đó, exciton có spin nguyên và được xem là giả hạt boson có thể ngưng tụ khi mật độ đủ lớn và ở nhiệt độ đủ thấp. Có thể nói, trạng thái ngưng tụ exciton được tiên đoán như một trong những trạng thái cơ bản trong các hệ có chuyển pha bán kim loại – bán dẫn và đã được tập trung nghiên cứu về mặt lý thuyết từ hơn 60 năm trước [2, 3]. Trạng thái này còn được gọi là trạng thái điện môi exciton (excitonic insulator – EI). Mặc dù vậy, do thời gian sống của exciton ngắn nên những quan sát thực nghiệm về trạng thái EI đến nay vẫn còn khiêm tốn. Để tạo được các exciton bền hơn, người ta thường sử dụng các vật liệu bán kim loại, bán dẫn tạo nên từ những vật liệu có cấu trúc hai lớp được làm từ graphene, dichalcogenide kim loại chuyển tiếp, hay bán kim loại Weyl,... Các kết quả thực nghiệm trên các vật liệu này đã khẳng định chắc chắn sự tồn tại của trạng thái ngưng tụ exciton [4-6].

Về mặt lý thuyết, mô hình Falicov-Kimball mở rộng (extended Falicov-Kimball – EFK) là một trong số những mô hình thường được sử dụng rộng rãi để nghiên cứu trạng thái EI [7-9]. Tuy nhiên, với việc sử dụng mô hình này, người ta chỉ quan tâm tới tương tác Coulomb giữa điện tử và lỗ trống mà bỏ qua tương tác giữa điện tử với phonon. Trong khi đó, tương tác này đóng vai trò quan trọng trong việc hỗ trợ sự kết cặp điện tử - lỗ trống hình thành exciton và thiết lập trạng thái ngưng tụ của hệ exciton. Trong một vài nghiên cứu trước, chúng tôi đã phân tích sự hình thành trạng thái EI trong một số vật liệu có chuyển pha bán kim loại-bán dẫn thông qua khảo sát tính chất của tham số trật tự trạng thái EI trong mô hình EFK có tương tác điện tử - phonon [10 - 13]. Kết quả cho thấy exciton ngưng tụ ở nhiệt độ thấp, trong khoảng giữa hai giá trị tới hạn của cường

độ thế tương tác Coulomb. Trong giới hạn tương tác yếu, ở các hệ bán kim loại, exciton ngưng tụ trong trạng thái dạng BCS như các cặp Cooper trong lý thuyết siêu dẫn của John Bardeen, Leon Cooper và Robert Schrieffer [14]. Khi tương tác Coulomb đủ lớn, do dịch chuyển Hartree tách các dải dẫn và dải hóa trị, hệ chuyển sang pha bán dẫn thì các exciton liên kết chặt hình thành trước đó lại ngưng tụ trong trạng thái dạng BEC như những nguyên tử trung hòa. Giao nhau của hai trạng thái ngưng tụ dạng BCS và BEC của exciton cũng đã được xem xét. Tuy nhiên, bằng việc nghiên cứu tính chất của tham số trật tự, ta chỉ có thể hiểu được đặc điểm của sự ngưng tụ ở dưới điểm chuyển pha. Do đó, để có thể hiểu một cách đầy đủ và chi tiết về chuyển pha trạng thái EI trong hệ, cần phải nghiên cứu đặc điểm động học của sự ngưng tụ cả ở trên và dưới điểm chuyển pha. Để nghiên cứu sự ngưng tụ ở trên điểm chuyển pha, người ta thường xem xét tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Bên cạnh đó, bằng việc khảo sát các tính chất nhiệt điện động của hệ bán dẫn khe hẹp đất hiếm $\text{TmSe}_{0.45}\text{Te}_{0.55}$, P. Wachter và cộng sự đã khẳng định sự tồn tại của trạng thái EI ở nhiệt độ dưới 20K và trong khoảng áp suất từ 5 kbar đến 13 kbar, xung quanh vị trí chuyển pha bán kim loại – bán dẫn [14, 15]. Do đó, nghiên cứu ảnh hưởng của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng thái EI trong hệ là cần thiết.

Trong bài báo này, chúng tôi nghiên cứu lý thuyết về sự hình thành trạng thái EI trong mô hình EFK có liên kết với phonon thông qua phân tích tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh dưới ảnh hưởng của áp suất ngoài. Bằng áp dụng gần đúng Hartree-Fock không giới hạn, chúng tôi rút ra hệ phương trình tự hợp xác định các giá trị kì vọng, từ đó tìm ra hàm cảm ứng exciton tĩnh thông qua sử dụng gần đúng pha ngẫu nhiên. Từ các kết quả tính toán giải tích, chúng tôi thiết lập chương trình tính số xác định giá trị của hàm cảm ứng exciton tĩnh và

nhờ đó thiết lập được các giản đồ pha mô tả chuyển pha trạng thái EI trong hệ ở nhiệt độ không.

Bài báo được chia thành 4 phần. Trong phần 2, chúng tôi giới thiệu mô hình EFK có liên kết với phonon, đồng thời trình bày các tính toán giải tích để rút ra hệ phương trình tự hợp xác định tham số trật tự và hàm cảm ứng exciton tĩnh. Giải hệ phương trình tự hợp bằng phương pháp tính số, chúng tôi xác định được giá trị của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Từ đó, chúng tôi trình bày các kết quả tính số và thảo luận trong phần 3. Cuối cùng là các kết luận được đưa ra ở phần 4 của bài báo.

2. Mô hình và tính toán giải tích

Hamiltonian của mô hình EFK có liên kết với phonon được viết trong không gian xung lượng dưới dạng sau

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{int} \quad (1)$$

$$\mathcal{H}_{int} = \frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \mathbf{q}} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + \frac{g}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} [c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} (b_{-\mathbf{q}}^\dagger + b_{\mathbf{q}}) + f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} (b_{\mathbf{q}}^\dagger + b_{-\mathbf{q}})] \quad (4)$$

với U là cường độ thế tương tác Coulomb giữa các điện tử c - f và g là hằng số liên kết điện tử-phonon. Ở đây, N chỉ số nút mạng trong tinh thể.

$$\mathcal{H}^{UHF} = \mathcal{H}_e^{UHF} + \mathcal{H}_{ph}^{UHF} \quad (5)$$

trong đó phần điện tử có dạng

$$\mathcal{H}_e^{UHF} = \sum_{\mathbf{k}} [\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^c c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} + \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + \Lambda (c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})] \quad (6)$$

với

$$\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^{c(f)} = \varepsilon_{\mathbf{k}}^{c(f)} + U n^{f(c)} \quad (7)$$

là năng lượng tán sắc tái chuẩn hóa của các điện tử c (f). Phần phonon là

$$\mathcal{H}_{ph}^{UHF} = \omega_0 \sum_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}} + \sqrt{N} h (b_{-\mathbf{q}}^\dagger + b_{-\mathbf{q}}) \quad (8)$$

ở đây, $n^c = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} \rangle$ và $n^f = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle$ lần lượt là mật độ của điện tử c và điện tử f được xác định bởi

trong đó, thành phần không tương tác của hệ điện tử – lỗ trống – phonon là

$$\mathcal{H}_0 = \sum_{\mathbf{k}} (\varepsilon_{\mathbf{k}}^c c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} + \varepsilon_{\mathbf{k}}^f f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + \omega_0 b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}}) \quad (2)$$

với $c_{\mathbf{k}}^\dagger$ ($c_{\mathbf{k}}$), $f_{\mathbf{k}}^\dagger$ ($f_{\mathbf{k}}$) và với $b_{\mathbf{k}}^\dagger$ ($b_{\mathbf{k}}$) lần lượt là các toán tử sinh (hủy) của các điện tử c trên dải dẫn, điện tử f trên dải hóa trị và phonon mang xung lượng \mathbf{k} . Trong đó, ω_0 là năng lượng không tán sắc của phonon, còn năng lượng tán sắc của các điện tử c - f được cho bởi

$$\varepsilon_{\mathbf{k}}^{c(f)} = \varepsilon^{c(f)} - t^{c(f)} \gamma_{\mathbf{k}} - \mu \quad (3)$$

với $\varepsilon^{c(f)}$ và $t^{c(f)}$ tương ứng là năng lượng tại nút và tích phân nhảy nút của điện tử $c(f)$; $\gamma_{\mathbf{k}} = 2(\cos k_x + \cos k_y)$ chỉ bước nhảy trong mạng tinh thể hai chiều hình vuông với hằng số mạng $a = 1$ và μ là thế hóa học. Số hạng còn lại trong Hamiltonian (1) mô tả phần tương tác bao gồm cả tương tác Coulomb và tương tác điện tử-phonon

Áp dụng gần đúng Hartree-Fock không giới hạn, bỏ qua thăng giáng và các hằng số thì Hamiltonian trong phương trình (1) được tách thành hai phần như sau

$$\begin{aligned} \langle c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} \rangle &= n^F(\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^c) \\ \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle &= n^F(\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f) \end{aligned} \quad (9)$$

trong đó $n^F(\varepsilon) = (1 + e^{\varepsilon/T})^{-1}$ là hàm phân bố Fermi-Dirac với T là nhiệt độ tuyệt đối.

Trong công thức (6) và (8), các trường thêm vào Λ và h được xác định như sau

$$\Lambda = -\frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle + \frac{g}{\sqrt{N}} \langle b_{-\mathbf{q}}^\dagger + b_{-\mathbf{q}} \rangle \quad (10)$$

$$h = \frac{g}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \rangle \quad (11)$$

Ở đây, Λ và h đều chứa số hạng lai hóa đặc trưng cho trạng thái ngưng tụ exciton $\langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle$ nên chúng được xem là tham số trật tự trạng thái ngưng tụ. Khi tham số trật tự khác không, thể hiện sự lai hóa mạnh giữa các điện tử $c - f$, do đó có thể khẳng định hệ tồn tại trong trạng thái EI. Việc khảo sát tính chất của tham số trật tự để nghiên cứu sự hình thành của

trạng thái EI đã được chúng tôi thực hiện trong các nghiên cứu trước đó [10 - 13].

Trong nghiên cứu này, để mô tả rõ hơn tính chất động học của chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton phía trên điểm chuyển pha, chúng tôi phân tích thêm tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Hàm cảm ứng exciton tĩnh trong không gian xung lượng được xác định bởi

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{\omega} \quad (12)$$

Sử dụng Hamiltonian (1) để viết phương trình chuyển động cho hàm Green hai hạt ta thu được

$$\begin{aligned} \omega \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{\omega} &= \langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle - \langle n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c \rangle \\ &+ (\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c - \varepsilon_{\mathbf{k}}^f) \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{\omega} \\ &+ \frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{q}_1} \langle \langle (f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}_1} f_{\mathbf{k}_1-\mathbf{q}_1}^\dagger f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}-\mathbf{q}_1} - c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}_1}^\dagger c_{\mathbf{k}_1} f_{\mathbf{k}_1-\mathbf{q}_1}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{\omega} \\ &+ \frac{g}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{q}_1} \langle \langle (f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}-\mathbf{q}_1} - c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}_1}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) (b_{-\mathbf{q}_1}^\dagger + b_{\mathbf{q}_1}) | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{\omega} \end{aligned} \quad (13)$$

Viết tiếp phương trình chuyển động cho các hàm Green bậc cao và sử dụng gần đúng pha ngẫu nhiên, chúng ta thu được biểu thức cuối cùng xác định hàm cảm ứng exciton như sau:

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{-\chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega)}{1 + \left(U - \frac{2g^2\omega_0}{\omega^2 - \omega_0^2 - \frac{2g^2\omega_0\chi^{0b}(\mathbf{q}, \omega)}{1 + U\chi^{0b}(\mathbf{q}, \omega)}} \right) \chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega)} \quad (14)$$

với

$$\chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle - \langle n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c \rangle}{\omega - \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c + \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f} \quad (15)$$

$$\chi^{0b}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\langle n_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^c \rangle - \langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle}{\omega - \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f + \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^c} \quad (16)$$

trong đó $\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle = \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle$ và $\langle n_{\mathbf{k}}^c \rangle = \langle c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} \rangle$ được xác định theo công thức (9).

Trong bài báo này, pha ngưng tụ exciton được xác định thông qua xem xét tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ tức là khi $\omega \rightarrow 0$. Ở đây, chúng tôi cũng chỉ xét các exciton có xung lượng khối tâm $\mathbf{q} = 0$ tham gia vào hình thành pha ngưng tụ. Điều này là hoàn toàn phù hợp với trạng thái của exciton đã được quan sát gần đây trong vật liệu Ta_2NiSe_5 [16, 17] cũng như các nghiên cứu lý thuyết trước đó của chúng tôi [18]. Do đó, chúng tôi tập trung khảo sát hàm cảm ứng exciton tĩnh $\chi = \chi(\mathbf{0}, 0)$ với công thức tổng quát được xác định trong công thức (14). Như vậy, các phương trình (6) và (9)-(11) cho ta hệ phương trình tự hợp xác định tham số trật tự trạng thái EI và từ đó có thể tính được cụ thể giá trị của hàm cảm ứng exciton tĩnh từ các phương trình (14)-(16).

3. Kết quả tính số và thảo luận

Từ các kết quả tính toán giải tích ở phần trước, chúng tôi thiết lập chương trình tính số giải tự hợp các phương trình (6) và (9)-(11) để từ đó có được kết quả cụ thể của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Trong phần này, chúng tôi trình bày các kết quả tính số nhận được để thảo luận ảnh hưởng của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng t

của điện tử c và điện tử f . Trong nghiên cứu này, với sự lựa chọn $\varepsilon^c = 0$ thì năng lượng tại nút ε^f của điện tử f thể hiện mức độ xen phủ giữa hai dải, đặc trưng cho khả năng liên kết giữa các điện tử và lỗ trống để tạo thành exciton do áp suất bên ngoài gây ra [15, 19]. Vì vậy, khảo sát tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh theo năng lượng tại nút ε^f sẽ cho thấy ảnh hưởng của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng thái EI trong hệ.

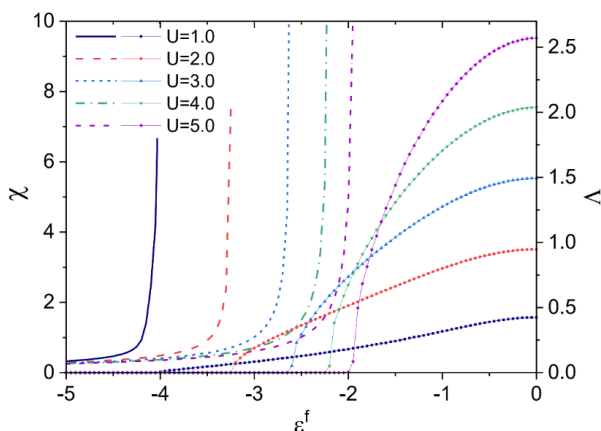
Trước tiên, chúng tôi khảo sát sự hình thành trạng thái EI trong hệ dưới ảnh hưởng của áp suất ngoài khi hằng số liên kết điện tử - phonon đủ lớn trong trạng thái cơ bản tức là tại nhiệt độ $T = 0$. Hình 1 biểu thị sự phụ thuộc của tham số trật tự Λ và hàm cảm ứng exciton tĩnh χ vào năng lượng tại nút ε^f của điện tử f với một vài giá trị của U khi $g = 0.6$. Hình 1 cho thấy ứng với một giá trị xác định của thế tương tác Coulomb U , tham số trật tự chỉ khác không hay trạng thái EI chỉ được thiết lập khi năng lượng tại nút ε^f lớn hơn một giá trị tới hạn hay áp suất ngoài tác dụng lên hệ đủ lớn. Giảm áp suất ngoài áp dụng lên hệ làm giảm ε^f , hay giảm mức độ xen phủ giữa hai dải năng lượng, do đó làm giảm khả năng kết cặp của các điện tử c với điện tử f hình thành exciton nên trạng thái ngưng tụ bị suy yếu thể hiện bởi sự giảm giá trị của tham số trật tự. Khi áp suất nhỏ hơn giá trị tới hạn, trạng thái liên kết bị phá hủy hoàn toàn và hệ chuyển sang trạng thái lỏng của điện tử - lỗ trống. Tăng cường độ thế tương tác Coulomb U , làm tăng cường liên kết giữa các điện tử - lỗ trống hình thành exciton nên tham số trật tự tăng lên. Nhưng tăng U cũng làm tăng sự phân tách giữa dải hóa trị và dải dẫn do dịch chuyển

ng và thực hiện
n $N = 500 \times 500$

nú mạng. C ig

và $t^f = 0.3 < t^c$ thể hiện dải hóa trị hẹp hơn dải dẫn hay điện tử f định xứ hơn. Sự chênh lệch giữa hai giá trị năng lượng, $\varepsilon^c - \varepsilon^f$, thể hiện mức độ xen phủ giữa các dải năng lượng

Hartree, giá trị tới hạn của áp suất ngoài tác động lên hệ do đó cũng tăng lên làm cho giá trị tới hạn của ε^f cũng tăng theo.



Hình 1: Tham số trật tự Λ (đường liền nét-biểu tượng) và hàm cảm ứng exciton tĩnh χ phụ thuộc vào năng lượng tại nút ε^f khi U thay đổi tại $g = 0.6$.

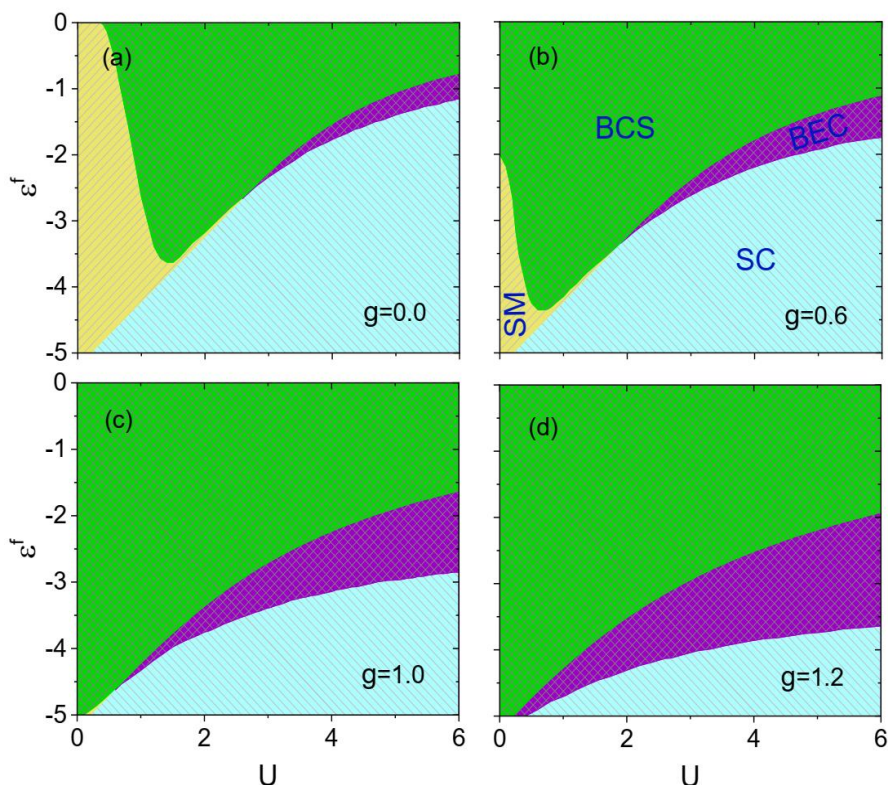
Rõ ràng là với việc phân tích tính chất của tham số trật tự Λ , chúng ta có thể mô tả được chuyển pha trạng thái EI trong hệ exciton. Tuy nhiên, tham số trật tự chỉ thể hiện tính chất của sự ngưng tụ ở dưới điểm chuyển pha. Do đó, để có thể hiểu một cách đầy đủ và chi tiết về chuyển pha trạng thái EI trong hệ, cần phải nghiên cứu thêm đặc điểm động học của sự ngưng tụ ở trên điểm chuyển pha. Hàm cảm ứng exciton tĩnh là một trong số những đại lượng vật lý thường được xem xét. Trên Hình 1 chúng ta nhận thấy ứng với mọi giá trị của thế tương tác Coulomb U , giá trị của hàm cảm ứng exciton tĩnh luôn tăng khi tăng áp suất ngoài tức là tăng năng lượng tại nút ε^f . Gần tới giá trị tới hạn của năng lượng tại nút ε^f , hàm cảm ứng tĩnh tăng mạnh và sau đó phân kỳ tại giá trị tới hạn đó, thể hiện hệ chuyển sang trạng thái EI. Ở dưới áp suất tới hạn, trạng thái ngưng tụ bị suy yếu được thể hiện bởi sự giảm mạnh giá trị của hàm cảm ứng tĩnh khi ε^f giảm. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với các dữ liệu thực nghiệm thu được trên hợp chất đất hiếm $\text{TmSe}_{0.45}\text{Te}_{0.55}$ [14,15]. Khi áp suất đủ lớn, các dải $4f$ và $5d$ xen phủ nhau, khi đó các điện tử $4f$ dễ dàng kết cặp với các điện tử $5d$ để tạo thành các exciton dưới

sự hỗ trợ của phonon và có thể ngưng tụ ở trạng thái EI khi nhiệt độ đủ thấp.

Tiếp theo, để thấy rõ hơn ảnh hưởng của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng thái EI trong hệ, chúng tôi biểu thị trên Hình 2 các giản đồ pha của mô hình trong mặt phẳng (U, ε^f) trong trạng thái cơ bản, tức là tại nhiệt độ không, ứng với một vài giá trị của hằng số liên kết điện tử - phonon. Giản đồ pha ở đây được thiết lập dựa trên khảo sát tính chất phân kỳ của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Ứng với mỗi giá trị xác định của thế tương tác Coulomb, chúng tôi tìm giá trị tới hạn của năng lượng tại nút ε^f của điện tử f tại vị trí phân kỳ của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Ở đây, chúng tôi còn xác định giao nhau BCS-BEC của các dạng ngưng tụ của exciton trong hệ. Ranh giới pha ngưng tụ exciton trong giới hạn tương tác yếu và giới hạn tương tác mạnh được xác định tại các vị trí mà tại đó giá trị tham số trật tự $\langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle$ đạt cực đại tại xung lượng $\mathbf{k} = \mathbf{0}$. Trong giới hạn tương tác yếu, dải hóa trị và dải dẫn xen phủ nhau, mặt Fermi rộng và do đó sự lai hóa của các điện tử và lỗ trống gần mặt Fermi được thiết lập. Tham số trật tự $\langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle$ có giá trị cực đại tại các xung lượng gần xung lượng Fermi, thể hiện rằng chỉ những điện tử và lỗ trống gần mặt Fermi mới tham gia kết cặp và hình thành trạng thái EI. Do đó, trong trường hợp này pha EI có dạng BCS tương tự như của các cặp Cooper trong lý thuyết siêu dẫn. Ngược lại, trong giới hạn tương tác mạnh, mặc dù các dải $c - f$ tách xa nhau, nhưng tương tác Coulomb mạnh sẽ tăng cường liên kết điện tử - lỗ trống để hình thành các exciton liên kết chặt. Khi đó, một số lượng lớn các exciton được hình thành và ngưng tụ trong trạng thái BEC với tham số trật tự $\langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle$ có cực đại tại xung lượng $\mathbf{k} = \mathbf{0}$. Do đó, ranh giới giao nhau BCS-BEC của các trạng thái ngưng tụ exciton được xác định bởi các vị trí này. Giản đồ trên Hình 2 cho thấy với một hằng số liên kết điện tử - phonon xác định, ta luôn tìm thấy trạng thái EI với ε^f lớn hay áp

suất ngoài tác dụng lên hệ đủ lớn. Trong trường hợp này, các dải c và f xen phủ nhau và hệ ổn định trong trạng thái ngưng tụ exciton dạng BCS (vùng kẻ caro BCS). Dạng ngưng tụ này bị suy yếu trong giới hạn tương tác yếu [xem Hình 2 (a) và (b)]. Trong giới hạn này, liên kết điện tử - phonon chưa đủ lớn và nếu tương tác Coulomb nhỏ, các điện tử và lỗ trống sẽ không thể kết cặp và do đó hệ tồn tại trong trạng thái bán kim loại (vùng gạch chéo SM). Đặc biệt, khi không có liên kết điện tử - phonon, tương tác Coulomb phải đủ lớn mới có thể thiết lập trạng thái ngưng tụ, do đó vùng ngưng tụ bị thu hẹp trong một khoảng giá trị giới hạn của thế tương tác Coulomb [Hình 2 (a)]. Ngược lại, khi liên kết điện tử - phonon đủ lớn, trạng thái EI

có thể được tìm thấy ngay cả khi không có tương tác Coulomb [xem Hình 2 (c) và (d)]. Trong trường hợp này, trạng thái EI được thiết lập hoàn toàn chỉ bởi liên kết điện tử-phonon. Ứng với mọi giá trị của hằng số liên kết điện tử-phonon, ngưng tụ exciton dạng BEC luôn được ổn định với tương tác Coulomb lớn. Giản đồ cũng cho thấy, hệ sẽ không còn ở trạng thái EI mà chuyển sang pha bán dẫn (vùng gạch chéo SC) nếu áp suất ngoài lớn hơn một giá trị tới hạn. Điều này góp phần làm sáng tỏ những quan sát thực nghiệm trên hợp chất đất hiếm $\text{TmSe}_{0.45}\text{Te}_{0.55}$ về sự ổn định của trạng thái EI ở nhiệt độ thấp trong khoảng áp suất từ 5 kbar đến 13 kbar [15, 19].



Hình 2: Giản đồ pha trạng thái cơ bản của mô hình trong mặt phẳng (U, ϵ^f) khi g thay đổi. Trạng thái ngưng tụ exciton trong dạng BCS hay BEC được biểu thị bởi vùng kẻ caro. Trạng thái bán kim loại (SM) hay bán dẫn (SC) được biểu thị bởi vùng gạch chéo.

4. Kết luận

Trong bài báo này, bằng việc sử dụng mô hình Falicov-Kimball mở rộng có liên kết với phonon, chúng tôi đã nghiên cứu ảnh hưởng của áp suất ngoài lên tính chất của hàm cảm

ứng exciton tĩnh hay sự hình thành trạng thái EI trong hệ bán kim loại, bán dẫn. Áp dụng gần đúng Hartree-Fock không giới hạn, chúng tôi đã rút ra hệ phương trình tự hợp xác định tham số trật tự trạng thái EI và từ đó tìm được hàm

cảm ứng exciton tĩnh nhờ sử dụng gần đúng pha ngẫu nhiên. Trên cơ sở các kết quả tính toán giải tích, chúng tôi thiết lập chương trình tính số giải hệ phương trình tự hợp, nhờ đó nhận được giá trị của hàm cảm ứng exciton tĩnh ở nhiệt độ không. Kết quả tính số cho thấy, hệ ổn định trong trạng thái EI khi áp suất ngoài đủ lớn. Tăng cường độ thế tương tác Coulomb thì áp suất ngoài tới hạn tác động lên hệ cho chuyển pha trạng thái EI tăng lên. Từ kết quả khảo sát tính chất hàm cảm ứng exciton tĩnh ở nhiệt độ không, chúng tôi cũng thiết lập các giản đồ mô tả chuyển pha trạng thái EI trong mặt phẳng (U, ϵ^f) ứng với một vài giá trị của hằng số liên kết điện tử - phonon. Các giản đồ thể hiện trạng thái EI ổn định trong dạng BCS khi áp suất ngoài tác dụng lên hệ đủ lớn và tương tác đủ mạnh. Còn dạng BEC luôn được ổn định ở vùng tương tác Coulomb lớn. Tăng hằng số liên kết điện tử - phonon thì vùng ngưng tụ được mở rộng. Những nghiên cứu kỹ lưỡng hơn về tính chất quang học của hệ trong trạng thái EI thông qua khảo sát độ dẫn quang sẽ là những nghiên cứu tiếp theo của chúng tôi trong tương lai.

Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Bộ Giáo dục và Đào tạo trong đề tài mã số B2021-MDA-14.

Tài liệu tham khảo

- [1] M. P. Marder (1999), *Condensed Matter Physics*, John Wiley & Sons, New Jersey.
- [2] N. F. Mott (1961), *The transition to the metallic state*, Philos. Mag. 6, 287.
- [3] R. Knox in: F. Seitz, D. Turnbull (Eds.) (1963), *Solid State Physics*, Academic Press, New York, p. Suppl. 5 p. 100.
- [4] Kogar, M. S. Rak, S. Vig, A. A. Husain, F. Flicker, Y. I. Joe, L. Venema, G. J. MacDougall, T. C. Chiang, E. Fradkin, J. van Wezel, and P. Abbamonte (2017), *Signatures of exciton condensation in a transition metal dichalcogenide*, Science 358, 1314.
- [5] D. K. Efimkin, G. W. Burg, E. Tutuc, and A. H. MacDonald (2020), *Tunneling and fluctuating electronhole Cooper pairs in double bilayer graphene*, Phys. Rev. B 101:035413.
- [6] Y.F. Lu, H. Kono, T.I. Larkin, A.W. Rost, T. Takayama, A.V. Boris, B. Keimer, and H. Takagi, *Zero-gap semiconductor to excitonic insulator transition in Ta_2NiSe_5* (2017), Nat. Commu. 8:14408,
- [7] D. Ihle, M. Pfafferoth, E. Burovski, F. X. Bronold, and H. Fehske. (2008), *Bound state formation and nature of the excitonic insulator phase in the extended Falicov-Kimball model*, Phys. Rev. B 78: 193103.
- [8] N. V. Phan, H. Fehske, and K. W. Becker (2011), *Excitonic resonances in the 2D extended Falicov-Kimball model*, Europhys. Lett. 95: 17006.
- [9] B. Zenker, D. Ihle, F. X. Bronold, and H. Fehske (2010), *On the existence of the excitonic insulator phase in the extended Falicov-Kimball model: A $SO(2)$ -invariant slave-boson approach*, Phys. Rev. B 81: 115122.
- [10] Thi-Hong-Hai-Do, Dinh-Hoi-Bui and Van-Nham-Phan (2017), *Phonon effects in the excitonic condensation induced in the extended Falicov-Kimball model*, Europhys. Lett. 119: 47003.
- [11] Thi-Hong-Hai Do, Huu-Nha Nguyen and Van-Nham Phan (2019), *Thermal Fluctuations in the Phase Structure of the Excitonic Insulator Charge Density Wave State in the Extended Falicov-Kimball Model*, J. Elec. Mat. 48: 2677.
- [12] Đỗ Thị Hồng Hải và Phan Văn Nhâm (2018), *Tính chất hàm phổ trong mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tương tác điện tử - phonon: Sự hình thành trạng thái điện môi exciton*, Tạp chí Khoa học và Công nghệ Đại học Duy Tân 6 (31): 89.
- [13] Đỗ Thị Hồng Hải và Phan Văn Nhâm (2018), *Giản đồ pha trạng thái ngưng tụ exciton trong mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tương tác điện tử - phonon*, Tạp chí Khoa học và Công nghệ Đại học Duy Tân 6 (31): 95.
- [14] P. Wachter, B. Bucher, and J. Malar (2004), *Possibility of a superfluid phase in a Bose condensed excitonic state*, Phys. Rev. B 69:094502.
- [15] P. Wachter (2018), *Exciton Condensation and Superfluidity in $TmSe_{0.45}Te_{0.55}$* , Adv. Mater. Phys. Chem. 8: 120.
- [16] P. A. Volkov, M. Ye, H. Lohani, I. Feldman, A. Kanigel and G. Blumberg (2021), *Critical charge fluctuations and emergent coherence in a strongly correlated excitonic insulator*, npj Quant. Mater. 6: 52
- [17] Y-S. Zhang, J. A. N. Bruin, Y. Matsumoto, M. Isobe and H. Takagi (2021), *Thermal transport signatures of the excitonic transition and associated phonon softening in the layered chalcogenide Ta_2NiSe_5* , Phys. Rev. B 104: L121201.
- [18] Thi-Hong-Hai-Do and Van-Nham-Phan (2022), *Excitonic condensation state in the assistance of the adiabatic and anti-adiabatic phonons*, J. Phys.: Condens. Matter 34: 165602.
- [19] P. Wachter and B. Bucher (2013), *Exciton condensation and its influence on the specific heat*, Physica B 408: 51.