

Trạng thái ngưng tụ exciton mất cân bằng khối lượng trong bán kim loại/bán dẫn

Mass imbalance excitonic condensation in the semimetallic/semiconducting materials

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

^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

(Ngày nhận bài: 08/08/2023, ngày phản biện xong: 25/08/2023, ngày chấp nhận đăng: 20/10/2023)

Tóm tắt

Chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton trong bán kim loại/bán dẫn do mất cân bằng khối lượng của điện tử và lỗ trống được xem xét thông qua khảo sát đồng thời tính chất của tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton và hàm cảm ứng exciton tĩnh trong mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tương tác điện tử - phonon. Áp dụng gần đúng Hartree-Fock không giới hạn, chúng tôi thu được hệ phương trình tự hợp xác định tham số trật tự. Trong pha đồng nhất, hàm cảm ứng exciton tĩnh cũng được xác định bằng gần đúng pha ngẫu nhiên. Kết quả tính số khẳng định, khi nhiệt độ đủ thấp và mất cân bằng khối lượng đủ nhỏ, hệ tồn tại trạng thái ngưng tụ exciton. Bức tranh thăng giáng liên kết cặp điện tử lỗ trống do mất cân bằng khối lượng ở gần nhiệt độ chuyển pha trạng thái ngưng tụ được cũng được đề cập.

Từ khóa: Ngưng tụ exciton; cảm ứng exciton tĩnh; mô hình Falicov-Kimball mở rộng; liên kết điện tử - phonon; mất cân bằng khối lượng.

Abstract

The excitonic condensation phase transition induced by the mass imbalance of electrons and holes in semimetal/semiconducting materials is considered by examining signatures of the excitonic condensate order parameter and the static excitonic susceptibility in the extended Falicov-Kimball model involving the electron-phonon coupling. In the framework of the unrestricted Hartree-Fock approximation, we find a set of self-consistent equations determining the order parameter. In the homogeneous state, we also derive an analytical expression of the static excitonic susceptibility in the random phase approximation. The numerical results reveal a stability of the excitonic condensation state in the case of sufficiently low temperatures and small mass-imbalance. Fluctuations of excitonic bound states near the phase transition due to the mass imbalance are also addressed.

Keywords: The excitonic condensation; the static excitonic susceptibility; the extended Falicov-Kimball model; the electron-phonon coupling; the mass imbalance.

*Tác giả liên hệ: Phan Văn Nhâm
Email: phanvannham@duytan.edu.vn

1. Đặt vấn đề

Được hình thành do sự kết cặp của điện tử - lỗ trống nhờ tương tác Coulomb, exciton được xem là một giả hạt boson trung hòa về điện [1]. Khi mật độ đủ lớn và ở nhiệt độ đủ thấp, các exciton có thể ngưng tụ trong trạng thái lượng tử mới theo lý thuyết ngưng tụ Bose-Einstein. Trạng thái này đã được đề xuất và thu hút sự tập trung nghiên cứu từ những năm 60 của thế kỷ trước [2, 3]. Mặc dù vậy, bản chất của trạng thái ngưng tụ exciton trong các hệ bán kim loại, bán dẫn cho đến nay vẫn còn gây tranh cãi.

Về mặt lý thuyết, trong nghiên cứu ngưng tụ exciton, người ta thường sử dụng mô hình hai dải năng lượng, với trạng thái kết cặp của điện tử c ở dải dẫn và điện tử f ở dải hóa trị tương đương với một trạng thái liên kết exciton. Trong số đó, mô hình Falicov-Kimball mở rộng là mô hình thường được sử dụng nhiều nhất [4-6]. Tuy nhiên, đây là mô hình thuần túy điện tử với tương tác Coulomb giữa điện tử và lỗ trống. Trong khi đó, các kết quả thực nghiệm đã khẳng định phonon hay sự lệch mạng tinh thể cũng đóng vai trò quan trọng trong việc hỗ trợ sự kết cặp điện tử - lỗ trống hình thành exciton và trạng thái ngưng tụ [7-11]. Trong các công trình trước, chúng tôi đã nghiên cứu trạng thái ngưng tụ exciton thông qua xem xét tính chất của tham số trật tự trong mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tương tác điện tử - phonon [12-15]. Tuy nhiên, thông qua khảo sát tham số trật tự, ta chỉ có thể mô tả được tính chất của sự ngưng tụ ở dưới điểm chuyển pha. Còn ở trên điểm chuyển pha, người ta thường xem xét tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Do đó, để có những hiểu biết đầy đủ về trạng thái ngưng tụ exciton, cần phải nghiên cứu đặc điểm của sự ngưng tụ cả trên và dưới điểm chuyển pha thông qua phân tích đồng thời tính chất của tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton và hàm cảm ứng exciton tĩnh.

Về mặt thực nghiệm, cho đến nay đã có rất nhiều nghiên cứu về ngưng tụ exciton trong một số vật liệu, kết quả cho thấy có một khoảng rộng về mối quan hệ giữa khối lượng của điện tử và lỗ trống mà trạng thái ngưng tụ của exciton có thể được thiết lập [16]. Chẳng hạn như, trong kim loại chuyển tiếp, khối lượng của lỗ trống thường lớn hơn khối lượng của điện tử một chút, cụ thể $m_h \approx 1,3m_e$. Còn trong giếng lượng tử đôi, lỗ trống thường nặng hơn điện tử rất nhiều, $m_h \approx 10m_e$. Tuy nhiên, trong các hệ graphene, khối lượng của điện tử và lỗ trống gần như bằng nhau. Do đó, khi mô tả hệ exciton trong mô hình hai dải năng lượng, để biểu thị mối quan hệ của khối lượng điện tử và lỗ trống, tích phân nhảy nút của điện tử f trên dải hóa trị thường được chọn nhỏ hơn tích phân nhảy nút của điện tử c trên dải dẫn thể hiện dải hóa trị hẹp hơn dải dẫn. Chẳng hạn như, trong tính toán số với hệ exciton trực tiếp trong kim loại chuyển tiếp, người ta thường lựa chọn $f = -0,3t^c$ [6] hay trong graphene, người ta thường lấy $f = -t^c$ [18]. Như vậy có thể nói, sự mất cân bằng khối lượng có thể ảnh hưởng đến sự hình thành và ngưng tụ exciton trong hệ.

Trong bài báo này, thông qua mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tương tác điện tử - phonon, chúng tôi nghiên cứu ảnh hưởng của mất cân bằng khối lượng và nhiệt độ lên sự hình thành trạng thái ngưng tụ exciton trong các hệ bán kim loại, bán dẫn. Trong khuôn khổ của gần đúng Hartree-Fock không giới hạn, chúng tôi rút ra hệ phương trình tự hợp xác định tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton, từ đó áp dụng gần đúng pha ngẫu nhiên tìm ra hàm cảm ứng exciton tĩnh. Từ các kết quả tính toán giải tích thu được, chương trình tính số xác định giá trị của tham số trật tự và hàm cảm ứng exciton tĩnh được thiết lập. Nhờ đó, chúng tôi xây dựng các giản đồ pha mô tả ảnh hưởng của mất cân bằng khối lượng và nhiệt độ lên chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ.

Bài báo gồm 4 phần. Trong đó, chúng tôi giới thiệu mô hình và 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 ở phần 2.

Trên cơ sở đó, chúng tôi thiết lập chương trình tính số với các kết quả nhận được và thảo luận trình bày trong phần 3. Cuối cùng là phần kết luận của bài báo.

2. Mô hình và tính toán giải tích

Trong không gian xung lượng, Hamiltonian của mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tương tác điện tử - phonon được viết dưới dạng sau

$$\mathcal{H} = \sum_{\mathbf{k}} (\varepsilon_{\mathbf{k}}^c c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} + \varepsilon_{\mathbf{k}}^f f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + \omega_0 b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}}) + \frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \mathbf{q}} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + \frac{g}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} [c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} (b_{-\mathbf{q}}^\dagger + b_{\mathbf{q}}) + f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} (b_{\mathbf{q}}^\dagger + b_{-\mathbf{q}})] \quad (1)$$

trong đó, số hạng thứ nhất mô tả phần không tương tác của hệ điện tử - phonon với $c_{\mathbf{k}}^\dagger (c_{\mathbf{k}})$, $f_{\mathbf{k}}^\dagger (f_{\mathbf{k}})$ và $b_{\mathbf{k}}^\dagger (b_{\mathbf{k}})$ lần lượt là các toán tử sinh (hủy) của điện tử c trên dải dẫn, điện tử f trên dải hóa trị và phonon mang xung lượng \mathbf{k} . Ở đây, ω_0 là năng lượng không tán sắc của phonon, còn năng lượng tán sắc của các điện tử $c(f)$ được cho bởi

$$\varepsilon_{\mathbf{k}}^{c(f)} = \varepsilon^{c(f)} - t^{c(f)} \gamma_{\mathbf{k}} - \mu \quad (2)$$

với $\varepsilon^{c(f)}$ và $t^{c(f)}$ lần lượt 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 thứ hai trong Hamiltonian (1) mô tả phần tương tác Coulomb với U là cường độ thế tương tác Coulomb giữa các điện tử $c - f$ và N chỉ số nút mạng trong tinh thể. Số hạng cuối cùng biểu thị phần tương tác điện tử - phonon với g là hằng số liên kết điện tử - phonon. Tại nhiệt độ đủ thấp, các exciton với xung lượng hữu hạn \mathbf{q} có thể ngưng tụ, được thể hiện bởi giá trị trung bình theo xung lượng $d_{\mathbf{k}} = \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle$ khác không. Đại lượng này biểu thị sự lai hóa giữa các điện tử c và điện tử f nên được gọi là tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton.

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 là phần điện tử và phần phonon. Trong đó, phần điện tử dễ dàng được chéo hóa bằng phép biến đổi Bogoliubov định nghĩa các toán tử giả hạt fermion mới

$$\begin{aligned} a_{1\mathbf{k}}^\dagger &= u_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger + v_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}}^\dagger \\ a_{2\mathbf{k}}^\dagger &= -v_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger + u_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}}^\dagger \end{aligned} \quad (3)$$

Còn phần phonon được chéo hóa nhờ định nghĩa toán tử phonon mới

$$B_{\mathbf{q}}^\dagger = b_{\mathbf{q}}^\dagger + \sqrt{N} \frac{\hbar}{\omega_0} \quad (4)$$

Khi đó, Hamiltonian trong gần đúng Hartree-Fock có thể được chéo hóa hoàn toàn, dưới dạng sau

$$\mathcal{H}_{HF} = \sum_{\mathbf{k}} (E_{\mathbf{k}}^1 a_{1\mathbf{k}}^\dagger a_{1\mathbf{k}} + E_{\mathbf{k}}^2 a_{2\mathbf{k}}^\dagger a_{2\mathbf{k}}) + \omega_0 \sum_{\mathbf{q}} B_{\mathbf{q}}^\dagger B_{\mathbf{q}} \quad (5)$$

trong đó các năng lượng giả hạt tái chuẩn hóa được cho bởi

$$E_{\mathbf{k}}^{1(2)} = \frac{\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f + \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c}{2} \mp \frac{\text{sgn}(\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f - \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c)}{2} W_{\mathbf{k}} \quad (6)$$

với $\tilde{\epsilon}_k^{c(f)}$ là năng lượng tán sắc tái chuẩn hóa của các điện tử c (f) được xác định bởi

$$\tilde{\epsilon}_k^{c(f)} = \epsilon_k^{c(f)} + Un^{f(c)} \quad (7)$$

ở đây, $n^c = \frac{1}{N} \sum_k \langle c_k^\dagger c_k \rangle = n^F(\tilde{\epsilon}_k^c)$ và $n^f = \frac{1}{N} \sum_k \langle f_k^\dagger f_k \rangle = n^F(\tilde{\epsilon}_k^f)$ lần lượt là mật độ của điện tử c và điện tử f với $n^F(\epsilon) = (1 + e^{\epsilon/T})^{-1}$ là hàm phân bố Fermi-Dirac trong đó T là nhiệt độ tuyệt đối.

$$W_k = \sqrt{(\tilde{\epsilon}_k^f - \tilde{\epsilon}_{k+q}^c)^2 + 4|\Lambda|^2} \quad (8)$$

trong đó Λ cũng được xem là tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton, được xác định như sau

$$\Lambda = -\frac{U}{N} \sum_k \langle c_{k+q}^\dagger f_k \rangle + \frac{g}{\sqrt{N}} \langle b_{-q}^\dagger + b_{-q} \rangle \quad (9)$$

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 ngưng tụ exciton.

Dạng chéo hóa hoàn toàn của phương trình (5) cho phép chúng ta dễ dàng xác định được giá trị trung bình mà cũng được xem là tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton

$$d_k = \langle c_{k+q}^\dagger f_k \rangle = -[n^F(E_k^1) - n^F(E_k^2)] \text{sgn}(\tilde{\epsilon}_k^f - \tilde{\epsilon}_{k+q}^c) \frac{\Lambda}{W_k} \quad (10)$$

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

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_\omega \quad (11)$$

Để suy ra biểu thức giải tích của hàm cảm ứng exciton, xuất phát từ phương trình chuyển động cho hàm Green hai hạt với việc sử dụng Hamiltonian (1) ta thu được

$$\begin{aligned} \omega \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_\omega &= \langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle - \langle n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c \rangle + (\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c - \epsilon_{\mathbf{k}}^f) \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_\omega \\ &+ \frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}_1, \mathbf{q}_1} \langle \langle (f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}_1} f_{\mathbf{k}_1-\mathbf{q}_1}^\dagger f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}-\mathbf{q}_1} - c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}_1}^\dagger c_{\mathbf{k}_1} f_{\mathbf{k}_1-\mathbf{q}_1}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_\omega \\ &+ \frac{g}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{q}_1} \langle \langle (f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}+\mathbf{q}-\mathbf{q}_1} - c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}_1}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) (b_{-\mathbf{q}_1}^\dagger + b_{\mathbf{q}_1}) | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_\omega \end{aligned} \quad (12)$$

Tiếp tục viết phương trình chuyển động cho các hàm Green bậc cao và tính gần đúng thông qua gần đúng pha ngẫu nhiên, chúng ta thu được biểu thức giải tích xác định hàm cảm ứng exciton như sau

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{-\chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega)}{1 + (U - g\Gamma_{\mathbf{q}})\chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega)} \quad (13)$$

với

$$\chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle - \langle n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c \rangle}{\omega - \tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c + \tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}}^f} \quad (14)$$

đóng vai trò như hàm cảm ứng exciton trần và

$$\Gamma_{\mathbf{q}} = \frac{2g\omega_0}{\omega^2 - \omega_0^2 - \frac{2g^2\omega_0\chi^{0b}(\mathbf{q}, \omega)}{1 + U\chi^{0b}(\mathbf{q}, \omega)}} \quad (15)$$

trong đó

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

Trong bài báo này, trạng thái ngưng tụ exciton được xem xét thông qua khảo sát đồng thời tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton và hàm cảm ứng exciton tĩnh với $\omega \rightarrow 0$. Các quan sát thực nghiệm gần đây về trạng thái ngưng tụ exciton trong Ta₂NiSe₅ [9, 10] cũng như các nghiên cứu lý thuyết của chúng tôi [18] đều khẳng định các exciton có xung lượng $q = 0$ thuận lợi trong hình thành trạng thái ngưng tụ. Do đó, trong nghiên cứu này, chúng tôi tập trung xem xét tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh $\chi = \chi(\mathbf{0}, 0)$ với công thức tổng quát được xác định trong phương trình (13).

3. Kết quả tính số và thảo luận

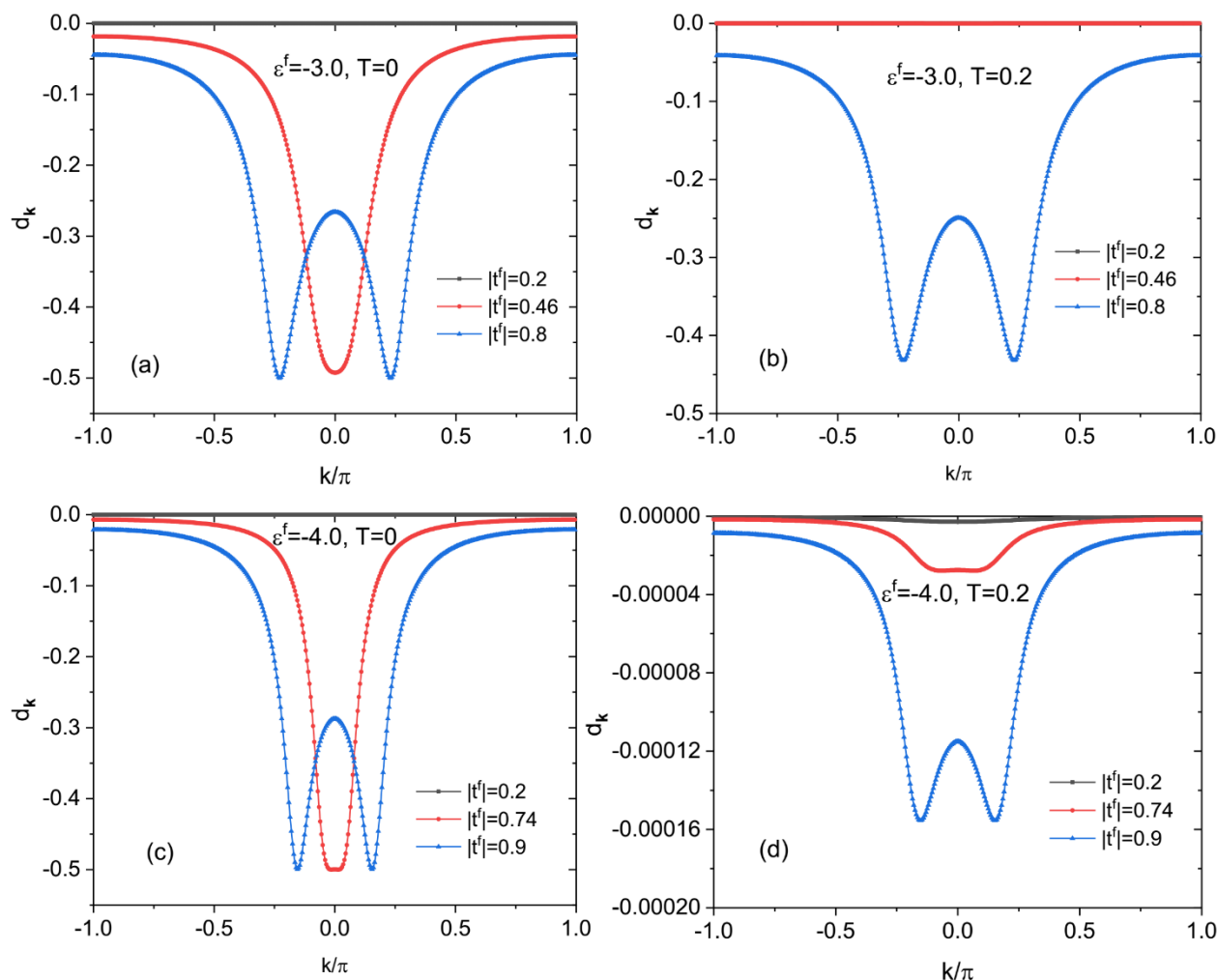
Từ các kết quả tính toán giải tích ở phần trước, chúng tôi thiết lập chương trình tính số giải tự hợp các phương trình (7)-(10) để tìm ra tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton, và từ đó có được giá trị cụ thể của hàm cảm ứng exciton tĩnh từ công thức (13). Trong phần này, chúng tôi trình bày các kết quả tính số nhận được để thảo luận ảnh hưởng của mất cân bằng khối lượng và nhiệt độ lên trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ. Ở đây, chúng tôi chọn $t^c = 1$ là đơn vị của năng lượng và thực hiện tính số trong hệ hai chiều gồm $N = 200 \times 200$ nút mạng. Không mất tính tổng quát, chúng tôi cố định $\omega_0 = 2.0$ và $\varepsilon^c = 0$. 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 năng lượng [19]. Trong các nghiên cứu trước đó, chúng tôi đã khẳng định exciton trong hệ ngưng tụ khi liên kết điện tử - phonon đủ lớn và thế tương tác Coulomb trong khoảng giữa hai giá trị tới hạn. Vì vậy, trong nghiên cứu này, chúng tôi cố định $g = 0.6$ và $U = 3.0$. Để nghiên cứu ảnh hưởng của mất cân bằng khối lượng, chúng tôi lựa chọn giá trị của tích phân nhảy nút của điện tử f sao cho $|t^f| < t^c$ thể

hiện dải hóa trị hẹp hơn dải dẫn hay điện tử f định xứ hơn.

Trước tiên, chúng tôi khảo sát sự phụ thuộc xung lượng của tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton trong vùng Brillouin thứ nhất với một vài giá trị khác nhau của tích phân nhảy nút của điện tử f trên Hình 1. Các giản đồ cho thấy bản chất trạng thái ngưng tụ exciton bị ảnh hưởng đáng kể bởi sự mất cân bằng khối lượng. Thật vậy, khi $|t^f|$ nhỏ tức là mất cân bằng khối lượng lớn, chẳng hạn $|t^f| = 0.2$, các giản đồ đều cho thấy tham số trật tự $d_k = 0$ ứng với mọi giá trị của xung lượng. Điều đó có nghĩa trạng thái ngưng tụ exciton không được thiết lập. Tăng $|t^f|$ hay giảm sự mất cân bằng khối lượng thì giá trị của d_k cũng tăng lên. Đặc biệt, Hình 1a cho thấy tại $|t^f| = 0.46$, d_k khác không và đạt cực đại tại xung lượng $k = 0$, thể hiện exciton trong hệ ngưng tụ trong trạng thái BEC (Bose Einstein condensed). Tuy nhiên, khi $|t^f|$ đủ lớn, ví dụ $|t^f| = 0.8$, d_k đạt cực đại tại xung lượng gần xung lượng Fermi. Điều đó chứng tỏ chỉ những điện tử và lỗ trống gần mức Fermi mới có thể ghép cặp hình thành exciton và trạng thái ngưng tụ. Trong trường hợp này, mức Fermi đóng vai trò quan trọng và sự hình thành của các exciton tương tự như hình thành các cặp Cooper trong lý thuyết BCS (John Bardeen, Leon Cooper, Robert Schrieffer) của siêu dẫn. Do đó, có thể nói exciton ngưng tụ trong trạng thái dạng BCS. Sự chuyển trạng thái ngưng tụ từ dạng BEC sang dạng BCS của exciton có thể được lý giải do sự giảm mất cân bằng khối lượng. Bên cạnh đó, giảm ε^f làm gia tăng sự phân tách giữa dải dẫn và dải hóa trị làm giảm khả năng ghép cặp điện tử - lỗ trống hình thành exciton. Do đó, khi giảm ε^f , sự lai hóa giữa điện tử và lỗ trống chỉ xuất hiện ở $|t^f|$ lớn hơn (xem Hình 1c, 1d). Điều này có nghĩa rằng

khi ε^f nhỏ, sự ngưng tụ exciton chỉ có thể được thiết lập ở mật cân bằng khối lượng thấp. Tăng nhiệt độ, năng lượng nhiệt lớn phá hủy trạng thái liên kết điện tử - lỗ trống hình thành exciton, vì

vậy giá trị của tham số trật tự giảm mạnh và $|t^f|$ phải rất lớn mới có thể thiết lập trạng thái ngưng tụ exciton (xem Hình 1b và 1d).



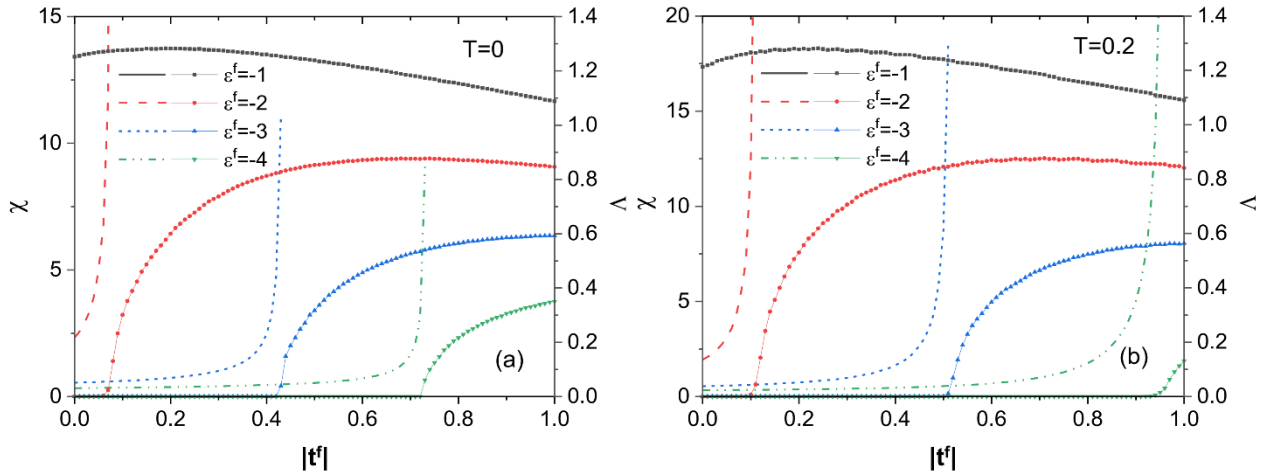
Hình 1: Sự phụ thuộc xung lượng của tham số trật tự ngưng tụ exciton d_k trong vùng Brillouin thứ nhất với các giá trị khác nhau của tích phân nhảy nút $|t^f|$ của điện tử f khi $\varepsilon^f = -3.0$ (Hình a, b) và $\varepsilon^f = -4.0$ (Hình c, d) ở trạng thái cơ bản $T = 0$ và $T = 0.2$.

Tiếp theo, để thấy rõ hơn ảnh hưởng của mật cân bằng khối lượng và nhiệt độ lên sự hình thành trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ, chúng tôi biểu thị trên Hình 2 sự phụ thuộc của tham số trật tự Λ và hàm cảm ứng exciton tĩnh χ vào tích phân nhảy nút $|t^f|$ với một vài giá trị của ε^f ở nhiệt độ $T = 0$ và $T = 0.2$. Hình 2 cho thấy ứng với một giá trị xác định của năng lượng tại nút ε^f , tham số trật tự chỉ khác không hay trạng thái ngưng tụ exciton chỉ được thiết lập khi tích phân nhảy nút $|t^f|$ lớn hơn một giá trị tới hạn hay mật cân bằng khối lượng giữa điện tử và

lỗ trống đủ nhỏ. Với ε^f nhỏ, chẳng hạn $\varepsilon^f = -4.0$, trạng thái ngưng tụ exciton chỉ ổn định trong một vùng nhỏ của $|t^f|$. Đặc biệt, khi tăng nhiệt độ, năng lượng nhiệt lớn phá vỡ liên kết điện tử - lỗ trống nên exciton ngưng tụ khi mật cân bằng khối lượng rất thấp, hay $|t^f| \approx 1$ (xem Hình 2b). Tăng ε^f , làm tăng mức độ xen phủ giữa dải dẫn và dải hóa trị, các điện tử và lỗ trống dễ dàng kết cặp với nhau hình thành exciton. Do đó trạng thái ngưng tụ exciton được thiết lập tại $|t^f|$ nhỏ hơn hay mật cân bằng khối lượng lớn. Đặc biệt, $\varepsilon^f = -1.0$, tham số trật tự khác không

ứng với mọi giá trị của năng lượng tại nút hay trạng thái ngưng tụ exciton có thể được tìm thấy

ngay cả khi $|t^f| = 0$. Trong trường hợp này, mô hình trở về mô hình Falicov-Kimball nguyên gốc.



Hình 2: Tham số trật tự Λ và hàm cảm ứng exciton tĩnh χ phụ thuộc vào tích phân nhảy nút $|t^f|$ ứng với một vài giá trị khác nhau của năng lượng tại nút ϵ^f của điện tử f và nhiệt độ T .

Như vậy, thông qua phân tích tính chất của tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton Λ , ta có thể mô tả được chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ ở dưới điểm chuyển pha. Để có thể hiểu một cách đầy đủ về chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ, cần phải nghiên cứu thêm tính chất của sự ngưng tụ ở trên điểm chuyển pha. Khi đó, hàm cảm ứng exciton tĩnh là một trong số những đại lượng vật lý thường được xem xét. Trên Hình 2 chúng tôi cũng biểu thị đồng thời sự phụ thuộc của hàm cảm ứng exciton tĩnh χ vào đại lượng đặc trưng cho sự mất cân bằng khối lượng $|t^f|$. Kết quả cho thấy ứng với mọi giá trị của năng lượng tại nút ϵ^f , tại một nhiệt độ xác định, hàm cảm ứng exciton tĩnh luôn tăng dần khi $|t^f|$ tăng. Điều đó cho thấy, khi chênh lệch khối lượng của điện tử và lỗ trống giảm, thăng giáng liên kết cặp điện tử-lỗ trống tăng dần, hay nói cách khác, sự đồng nhất khối lượng của điện tử và lỗ trống làm tăng cường khả năng liên kết của exciton. Khi sự chênh lệch khối lượng giữa điện tử và lỗ trống đủ nhỏ, liên kết cặp điện tử-lỗ trống đủ lớn và hệ ở trạng thái ngưng tụ exciton, thể hiện bởi sự phân kỳ của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Qua giá trị tới hạn này của $|t^f|$, tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton khác 0 và hệ ở trạng thái ngưng tụ

exciton. Với giá trị nhỏ của ϵ^f ($\epsilon^f = -4$), ban đầu hệ ở trạng thái bán dẫn và ta chỉ tìm được trạng thái ngưng tụ exciton khi khối lượng các hạt điện tử và lỗ trống tương đối đồng nhất. Khi mất cân bằng khối lượng của điện tử và lỗ trống tăng, ta chỉ có thể tìm thấy trạng thái ngưng tụ exciton khi hệ ban đầu ở trạng thái bán kim loại, hay giá trị của ϵ^f đủ lớn. Thậm chí, khi $\epsilon^f = -1$, hệ ở trạng thái bán kim loại, ta có thể tìm thấy trạng thái ngưng tụ exciton khi khối lượng của lỗ trống bằng vô cùng, tức lỗ trống xem như hoàn toàn định xứ, và mô hình ở Hamiltonian (1) trở về mô hình FKM nguyên gốc có tính tới tương tác điện tử-phonon. Thăng giáng nhiệt cũng ảnh hưởng tới sự ổn định của trạng thái ngưng tụ exciton. Điều đó được thể hiện trên Hình 2 khi chúng tôi thay đổi nhiệt độ. Cụ thể, khi tăng nhiệt độ, giá trị tới hạn của t^f dịch chuyển sang phải tương ứng với vùng ngưng tụ của exciton bị giảm.

4. Kết luận

Trong bài báo này, bằng việc sử dụng mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tương tác điện tử - phonon, chúng tôi đã nghiên cứu ảnh hưởng của mất cân bằng khối lượng và nhiệt độ lên sự hình thành trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ

bán kim loại, bán dẫn. Áp dụng gần đúng Hartree-Fock không giới hạn, chúng tôi thu được hệ phương trình tự hợp xác định tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton. Biểu thức giải tích xác định hàm cảm ứng exciton tĩnh cũng được thiết lập 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 xác định tham số trật tự và hàm cảm ứng exciton tĩnh. Kết quả tính số khẳng định sự tồn tại trạng thái ngưng tụ exciton ở nhiệt độ thấp khi mất cân bằng khối lượng đủ nhỏ. Khi năng lượng tại nút của điện tử nhỏ hay hệ ban đầu ở trạng thái bán dẫn, ngưng tụ exciton chỉ có thể được thiết lập khi khối lượng của điện tử tương đương với khối lượng của lỗ trống. Tăng nhiệt độ, thăng giáng nhiệt góp phần phá vỡ trạng thái liên kết cặp và trạng thái ngưng tụ exciton chỉ có thể xảy ra khi khối lượng của điện tử và lỗ trống gần như bằng nhau. Những nghiên cứu sâu sắc hơn về trạng thái ngưng tụ exciton ảnh hưởng bởi mất cân bằng khối lượng thông qua khảo sát các tính chất quang của hệ sẽ được tiến hành trong thời gian tới.

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] D. Ihle, M. Pfafferott, 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.
- [5] N. V. Phan, H. Fehske, and K. W. Becker. (2011). Excitonic resonances in the 2D extended Falicov-Kimball model. *Europhys. Lett.* 95, 17006.
- [6] 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.
- [7] G. Wang, A. Chernikov, M. M. Glazov, T. F. Heinz, X. Marie, T. Amand and B. Urbaszek. (2018). Colloquium: Excitons in atomically thin transition metal dichalcogenides. *Rev. Mod. Phys.* 90, 021001.
- [8] Kwangrae Kim, Hoon Kim, Jonghwan Kim, Changil Kwon, Jun Sung Kim and B. J. Kim. (2021). Direct observation of excitonic instability in Ta₂NiSe₅. *Nat. Commun.* 12, 1969.
- [9] P. A. Volkov, Mai 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.
- [10] Zhang Yuan-Shan, Bruin, Jan A. N., Matsumoto Yosuke, Isobe Masahiko and Takagi Hidenori. (2021). Thermal transport signatures of the excitonic transition and associated phonon softening in the layered chalcogenide Ta₂NiSe₅. *Phys. Rev. B* 104, L121201.
- [11] Min-Jae Kim, Armin Schulz, Tomohiro Takayama, Masahiko Isobe, Hidenori Takagi and Stefan Kaiser. (2020). Phononic soft mode behavior and a strong electronic background across the structural phase transition in the excitonic insulator Ta₂NiSe₅. *Phys. Rev. Res.* 2, 042039(R).
- [12] 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.
- [13] 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. Mater.* 48, 2677.
- [14] 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), 89–94.
- [15] Đỗ Thị Hồng Hải và Phan Văn Nhâm. (2018). Gián 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), 95–100.
- [16] S. Conti, D. Neilson, F. M. Peeters, A. Perali. (2020). Transition Metal Dichalcogenides as Strategy for High Temperature Electron-Hole Superfluidity. *Condens. Matter* 5, 22.
- [17] Perali, D. Neilson, A. R. Hamilton. (2013). High-Temperature Superfluidity in Double-Bilayer Graphene. *Phys. Rev. Lett.* 110, 146803.
- [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. (2018). Exciton Condensation and Superfluidity in TmSe_{0.45}Te_{0.55}. *Adv. Mat. Phys. Chem.* 8, 120-142.