

Ảnh hưởng của phonon lên tính chất hàm cảm ứng Exciton trong mô hình Falicov-Kimball mở rộng

Effects of phonons on the properties of the excitonic susceptibility function in the extended Falicov-Kimball model

Đỗ Thị Hồng Hải^a, Nguyễn Dương Bộ^b, Phan Văn Nhâm^{c,d*}
Do Thi Hong Hai^a, Nguyen Duong Bo^b, Phan Van Nham^{c,d*}

^aTrường Đại học Mở - Địa chất, Bắc Từ Liêm, Hà Nội, Việt Nam

^aHanoi University of Mining and Geology, Bac Tu Liem, Hanoi, Vietnam

^bHọc viện Khoa học và Công nghệ, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam, Hà Nội, Việt Nam

^bGraduate University of Science and Technology, Vietnam Academy of Science and Technology, Hanoi, Vietnam

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

^cInstitute of Research and Development, Duy Tan University, Danang, Vietnam

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

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

(Ngày nhận bài: 25/11/2021, ngày phản biện xong: 30/11/2021, ngày chấp nhận đăng: 15/01/2022)

Tóm tắt

Sự chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton trong mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tương tác điện tử - phonon được khảo sát thông qua nghiên cứu tính chất của hàm cảm ứng exciton. Bằng gần đúng trường trung bình, chúng tôi đã thu được hệ phương trình tự hợp cho phép xác định các giá trị kỳ vọng, từ đó tính được hàm cảm ứng exciton. Kết quả tính số khẳng định vai trò quan trọng của phonon trong việc thiết lập trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ ở nhiệt độ thấp. Giảm tần số phonon thì nhiệt độ tới hạn cho chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton tăng lên. Hệ tồn tại trong trạng thái ngưng tụ exciton khi hằng số tương tác điện tử - phonon đủ lớn và thế tương tác Coulomb trong khoảng giữa hai giá trị tới hạn. Giảm tần số phonon hay tăng hằng số tương tác điện tử - phonon thì vùng ngưng tụ exciton được mở rộng.

Từ khóa: Ngưng tụ exciton; hàm cảm ứng exciton; mô hình Falicov-Kimball mở rộng; tương tác điện tử - phonon; tần số phonon.

Abstract

Excitonic condensate state transition in the extended Falicov-Kimball model involving the electron - phonon interaction is addressed by considering properties of the excitonic susceptibility function. In the framework of the mean-field theory, we have derived a set of self-consistent equations, which allows us to determine the excitonic susceptibility. Numerical results indicate the role of phonon in establishing excitonic condensate state in the system at low temperature. Decreasing the phonon frequency, the excitonic condensate critical temperature increases. The system exists in an excitonic condensate state if the electron-phonon coupling is large enough and the Coulomb interaction is in between two critical values. Decreasing the phonon frequency or increasing the electron-phonon coupling, the excitonic condensed region is expanded.

Keywords: excitonic condensate state; the excitonic susceptibility function; the extended Falicov-Kimball model; the electron-phonon interaction; the phonon frequency.

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

Email: phanvannham@duytan.edu.vn

1. Mở đầu

Trạng thái ngưng tụ của các exciton mặc dù được đề xuất về mặt lý thuyết từ những năm 60 của thế kỷ trước [1, 2], nhưng cho đến nay trạng thái này vẫn đang thu hút sự quan tâm rất lớn của các nhà vật lý trên thế giới. Trong các vật liệu bán kim loại hay bán dẫn có khe năng lượng hẹp, nhờ lực hút tĩnh điện Coulomb liên kết các điện tử ở dải dẫn với các lỗ trống ở dải hoá trị mà exciton có thể được tạo thành. Ở nhiệt độ đủ thấp với mật độ đủ lớn, những exciton này có thể ngưng tụ trong một trạng thái lượng tử mới [1, 2]. Tuy nhiên, do thời gian sống ngắn nên cặp điện tử - lỗ trống ở gần nhau rất dễ tái kết hợp để hủy exciton. Điều này dẫn đến những kết quả thực nghiệm khẳng định trạng thái ngưng tụ exciton trong vật liệu vẫn còn hạn chế. Tuy nhiên, với việc tìm ra ngày càng nhiều hệ vật liệu có triển vọng để quan sát trạng thái này đã càng khẳng định chắc chắn những tiên đoán lý thuyết.

Trong số các mô hình lý thuyết thường dùng để khảo sát trạng thái ngưng tụ exciton, mô hình Falicov-Kimball mở rộng (Extended Falicov-Kimball model - EFKM) là mô hình tiêu biểu và thường được sử dụng nhiều nhất [3-5]. Mô hình EFKM là mô hình có tính tới sự nhảy trực tiếp điện tử dải c và dải f và thừa nhận sự kết cặp của điện tử c với điện tử f thông qua tương tác Coulomb. Với mô hình này, người ta xem như ghép cặp điện tử $c - f$ tương đương với một trạng thái exciton. Tuy nhiên, đây là mô hình hoàn toàn điện tử, trong đó đã bỏ qua phân tương tác giữa điện tử với phonon. Trong khi đó, các nghiên cứu thực nghiệm quan sát gần đây trên một số vật liệu đã cho thấy phonon cũng đóng vai trò quan trọng trong việc hình thành trạng thái ngưng tụ exciton [6 - 9]. Do vậy, tương tác giữa điện tử với phonon cần phải được đưa vào tính toán và xem xét kỹ lưỡng.

Trong một số nghiên cứu trước, chúng tôi đã khảo sát trạng thái ngưng tụ exciton trong mô hình EFKM có tương tác điện tử - phonon thông qua nghiên cứu tính chất của tham số trật tự trạng thái ngưng tụ [10 - 13]. Tuy nhiên, tham số trật tự chỉ cho thấy tính chất động học của sự ngưng tụ ở dưới điểm chuyển pha. Do đó, để có thể mô tả chi tiết hơn chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ, cần phải nghiên cứu thêm tính chất động học của sự ngưng tụ ở trên và đặc biệt là lân cận điểm chuyển pha. Bên cạnh đó, một số nghiên cứu gần đây trên vật liệu Ta_2NiSe_5 về độ dẫn quang bằng lý thuyết phiếm hàm mật độ kết hợp với nhóm tái chuẩn hóa ma trận mật độ, hay nghiên cứu các trạng thái điện tử trong không gian thực của pha nhiệt độ thấp, các tác giả đã khẳng định exciton hình thành trước khi ngưng tụ, ngay cả khi hệ ở trạng thái bán kim loại [14, 15]. Điều này hoàn toàn trái ngược với quan niệm trước đó cho rằng exciton hình thành và ngưng tụ đồng thời khi hệ ở trạng thái bán kim loại, còn chúng chỉ hình thành trước khi ngưng tụ ở trạng thái bán dẫn [16]. Vì vậy, nghiên cứu kỹ lưỡng các tính chất động học của hệ như độ dẫn quang, hàm cảm ứng exciton,... nhằm mô tả chi tiết cơ chế chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton trong các hệ bán kim loại, bán dẫn là hết sức cần thiết.

Trong bài báo này, chúng tôi nghiên cứu lý thuyết về sự hình thành trạng thái ngưng tụ exciton trong mô hình EFKM có kể đến tương tác điện tử - phonon bằng lý thuyết trường trung bình tĩnh. Trong đó, chúng tôi tập trung nghiên cứu ảnh hưởng của phonon lên sự hình thành trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ thông qua phân tích tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh.

Bài báo được chia thành 4 phần. Trong đó, chúng tôi trình bày mô hình EFKM có tương tác điện tử - phonon và áp dụng lý thuyết trường trung bình cho mô hình trong phần 2.

Từ đó chúng tôi rút ra hệ phương trình xác định hàm cảm ứng exciton thông qua các tham số của mô hình và giải hệ phương trình tự hợp bằng phương pháp tính số. Kết quả tính số và thảo luận được chúng tôi trình bày trong phần 3 của bài báo. Cuối cùng, phần 4 là kết luận của bài báo.

2. Mô hình và phương pháp lý thuyết

Để khảo sát trạng thái ngưng tụ exciton, chúng ta xuất phát từ Hamiltonian của mô hình EFKM có tương tác điện tử - phonon được viết trong không gian xung lượng như sau:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_{ph} + \mathcal{H}_{e-e} + \mathcal{H}_{e-ph} \quad (1)$$

trong đó, thành phần không tương tác của hệ điện tử trên dải dẫn c và điện tử trên dải hóa trị f là

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

với $c_{\mathbf{k}}^\dagger (c_{\mathbf{k}})$ và $f_{\mathbf{k}}^\dagger (f_{\mathbf{k}})$ lần lượt là các toán tử sinh (hủy) của các điện tử c và điện tử f mang xung lượng \mathbf{k} . Trong gần đúng liên kết chặt, năng lượng tán sắc của điện tử c và điện tử f được cho bởi

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

với $\varepsilon_{\mathbf{k}}^{c/f}$ là năng lượng tại nút của điện tử c và điện tử f ; $t^{c/f}$ là tích phân nhảy nút. Trong mạng hai chiều hình vuông với hằng số mạng $a = 1$, bước nhảy trong mạng tinh thể là $\gamma_{\mathbf{k}} = 2(\cos k_x + \cos k_y)$. Trong công thức (3), μ là thế hóa học. Phần năng lượng mô tả hệ phonon không tương tác là

$$\mathcal{H}_{ph} = \omega_0 \sum_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}} \quad (4)$$

với $b_{\mathbf{q}}^\dagger (b_{\mathbf{q}})$ là các toán tử sinh (hủy) phonon mang xung lượng \mathbf{q} với tần số không đổi ω_0 . Số hạng thứ ba trong Hamiltonian (1) mô tả phần tương tác Coulomb của hệ điện tử

$$\mathcal{H}_{e-e} = \frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \mathbf{q}} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \quad (5)$$

với U là cường độ thế tương tác Coulomb giữa điện tử c và điện tử f , N là số nút mạng tinh thể. Số hạng cuối cùng trong Hamiltonian (1) mô tả phần năng lượng tương tác của hệ điện tử với phonon

$$\mathcal{H}_{e-ph} = \frac{g}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} [c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}}^\dagger (b_{-\mathbf{q}}^\dagger + b_{\mathbf{q}}) + H. c.] \quad (6)$$

với g là hằng số tương tác điện tử - phonon.

Trong gần đúng trường trung bình, khi số hạng thăng giáng và các hằng số được bỏ qua, Hamiltonian trong phương trình (1) được viết lại tách riêng thành phần điện tử và phần phonon như sau

$$\mathcal{H}^{MF} = \mathcal{H}_e^{MF} + \mathcal{H}_{ph}^{MF} \quad (7)$$

trong đó phần điện tử

$$\mathcal{H}_e^{MF} = \sum_{\mathbf{k}} \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^c c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{k}} \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + \Delta \sum_{\mathbf{k}} (c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) \quad (8)$$

và phần phonon

$$\mathcal{H}_{ph}^{MF} = \omega_0 \sum_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}} + \sqrt{N} h (b_{-\mathbf{q}}^\dagger + b_{-\mathbf{q}}) \quad (9)$$

với năng lượng tán sắc tái chuẩn hóa của các điện tử

$$\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^{c/f} = \varepsilon_{\mathbf{k}}^{c/f} + U n^{f/c} \quad (10)$$

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 điện tử c và mật độ điện tử f với

$$\begin{aligned} \langle c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} \rangle &= n^F(\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^c) \\ \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle &= n^F(\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f) \end{aligned} \quad (11)$$

là hàm phân bố Fermi-Dirac có dạng $n^F(\varepsilon) = (1 + e^{\beta \varepsilon})^{-1}$ với $\beta = 1/T$ là nghịch đảo của nhiệt độ.

Trong công thức (8) và (9), các trường thêm vào

$$\Delta = -\frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle + \frac{g}{\sqrt{N}} \langle b_{-\mathbf{q}}^\dagger + b_{-\mathbf{q}} \rangle \quad (12)$$

$$h = \frac{g}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} \rangle \quad (13)$$

được xem là các tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton. Khi tham số trật tự khác không, hệ tồn tại trong trạng thái ngưng tụ exciton. Việc nghiên cứu sự hình thành và ngưng tụ của exciton thông qua tính chất của

$$\omega \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_\omega = \langle [f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'}] \rangle + \langle \langle [f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; \mathcal{H}] | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_\omega \quad (15)$$

Sử dụng Hamiltonian (1) tiếp tục viết phương trình chuyển động cho các hàm Green bậc cao hơn và ngắt hàm Green bằng gần đúng

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{-\chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega)}{1 + U\chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega) - \frac{2g^2\omega_0\chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega)}{\omega^2 - \omega_0^2 - \frac{2g^2\omega_0\chi^{0b}(\mathbf{q}, \omega)}{1 + U\chi^{0b}(\mathbf{q}, \omega)}}} \quad (16)$$

với

$$\chi^{0a}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle - \langle n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c \rangle}{\omega - \omega_{\mathbf{k}}^a(\mathbf{q})} \quad (17)$$

$$\chi^{0b}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\langle n_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^c \rangle - \langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle}{\omega - \omega_{\mathbf{k}}^b(\mathbf{q})} \quad (18)$$

trong đó

$$\omega_{\mathbf{k}}^a(\mathbf{q}) = \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c - \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f; \quad \omega_{\mathbf{k}}^b(\mathbf{q}) = \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f - \tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^c \quad (19)$$

Ở đây chúng ta đã ký hiệu $\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle = \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle$; $\langle n_{\mathbf{k}}^c \rangle = \langle c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} \rangle$ với giá trị được xác định từ công thức (11).

Như vậy, các phương trình (10)-(11) cho ta hệ phương trình tự hợp xác định các giá trị kỳ vọng và từ đó tính được hàm cảm ứng exciton từ các phương trình (16)-(19).

tham số trật tự đã được chúng tôi khảo sát chi tiết trong các nghiên cứu trước [10 - 13].

Trong nghiên cứu này, chúng tôi khảo sát sự hình thành trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ thông qua phân tích tính chất của hàm cảm ứng exciton. Trong không gian xung lượng, hàm cảm ứng exciton được viết dưới dạng

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} | c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_\omega \quad (14)$$

Để tính hàm cảm ứng exciton, chúng ta viết phương trình chuyển động cho hàm Green hai hạt

pha ngẫu nhiên, chúng ta thu được hàm cảm ứng exciton dưới dạng sau

3. Kết quả tính số và thảo luận

Trong phần này, chúng tôi trình bày kết quả nhận được từ chương trình tính số giải tự hợp hệ phương trình xác định hàm cảm ứng exciton được tìm ra trong phần trước với sai số không vượt quá 10^{-12} để thảo luận ảnh hưởng của phonon lên trạng thái ngưng tụ exciton trong ng bài toán này,

nặng. I

mất tính tổng quát, chúng tôi chọn $t^c = 1$ coi là đơn vị của năng lượng

$\varepsilon^c - \varepsilon^f = 2.0$; $t^f = 0.3$ đảm bảo dải dẫn rộng hơn dải hóa trị f hay điện tử f định xứ hơn.

ở

khi đó thể tích μ được thay đổi để thỏa mãn $n^c + n^f = 1$.

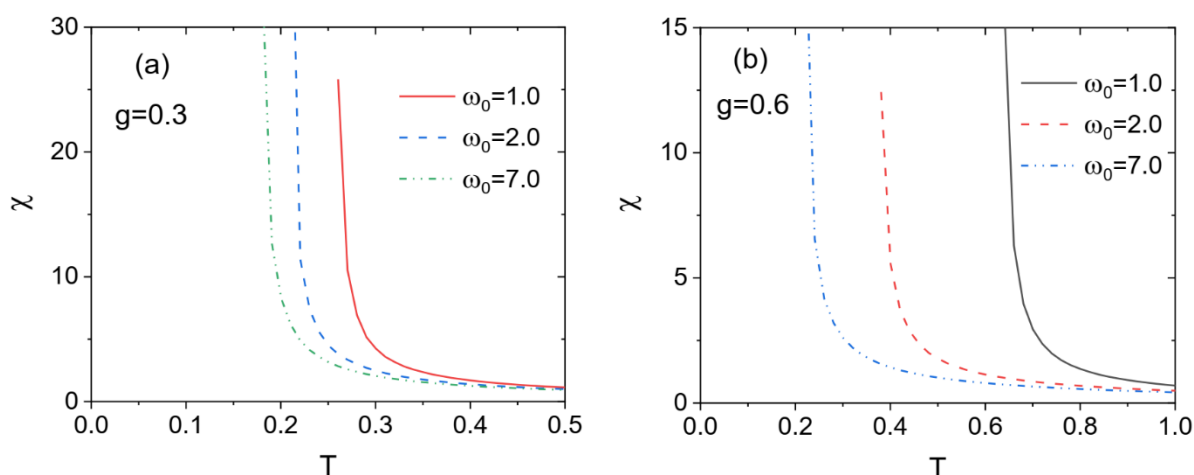
Ở đây, chúng tôi mô tả kịch bản ngưng tụ exciton trong mô hình thông qua khảo sát hàm cảm ứng exciton tĩnh tức là khi $\omega \rightarrow 0$. Chúng

tôi cũng xét các exciton có xung lượng khối tâm $\mathbf{q} = 0$ tham gia vào hình thành pha ngưng tụ. Do đó, trong bài báo này, chúng tôi chỉ xem xét tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh $\chi = \chi(\mathbf{0}, 0)$ với công thức tổng quát được xác định trong công thức (16).

Hàm cảm ứng exciton thể hiện sự thăng giáng exciton trong hệ, do đó sự tồn tại của trạng thái ngưng tụ exciton được thể hiện bởi sự phân kỳ của hàm cảm ứng. Chính vì vậy, trong nghiên cứu này, để mô tả sự hình thành trạng thái ngưng tụ của exciton trong mô hình, chúng ta sẽ khảo sát chi tiết ảnh hưởng của phonon lên tính chất phân kỳ của hàm cảm ứng exciton tĩnh χ trong hệ.

Trước tiên, chúng tôi khảo sát sự tồn tại của trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ khi xét đến ảnh hưởng của tần số phonon và hằng số tương

ω_0 là hằng số. Điều này hoàn toàn phù hợp với việc mô tả hệ phonon trong các hợp chất dichalcogenide kim loại chuyển tiếp ở vùng nhiệt độ thấp. Điển hình, ở hợp chất $\text{TmSe}_{0.45}\text{Te}_{0.55}$, nhiệt dung riêng phụ thuộc một cách tuyến tính theo nhiệt độ ở vùng nhiệt độ dưới nhiệt độ chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton, khác với đường theo quy luật Debye của các phonon âm [17, 18]. Mật độ phonon quang được xác định giảm tuyến tính khi giảm nhiệt độ. Điều này có thể hiểu được do xuất hiện liên kết của các phonon quang với exciton khi nhiệt độ ở dưới nhiệt độ chuyển pha [17, 18]. Từ dữ liệu thực nghiệm đo nhiễu xạ nhiệt tia X, người ta cũng khẳng định sự tồn tại trạng thái phonon quang với tần số phonon tăng khi giảm nhiệt độ, khi hệ ở trạng thái ngưng tụ exciton [19]. Hình 1 cho thấy ứng với một giá trị xác định của tần số phonon, giá trị của hàm



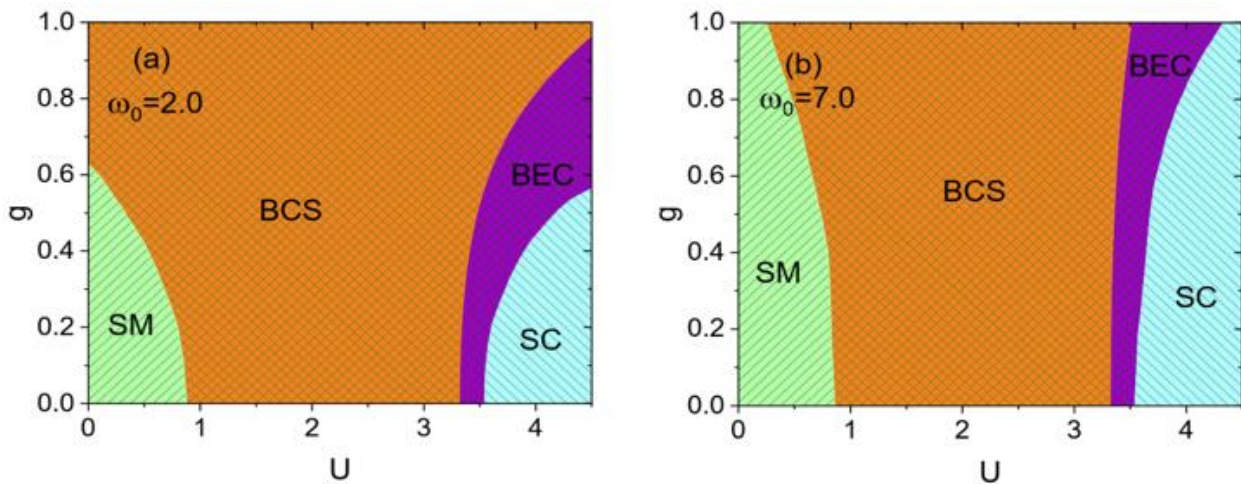
Hình 1: Hàm cảm ứng exciton tĩnh χ phụ thuộc vào nhiệt độ T tại $U = 3.0$ với $g = 0.3$ (hình a) và $g = 0.6$ (hình b) khi ω_0 thay đổi.

tác điện tử - phonon khi thế tương tác Coulomb đủ lớn $U = 3.0$. Hình 1 biểu thị sự phụ thuộc của hàm cảm ứng exciton tĩnh χ vào nhiệt độ T ở một vài giá trị khác nhau của tần số phonon ω_0 ứng với hai giá trị đủ lớn của hằng số tương tác điện tử - phonon $g = 0.3$ (hình a) và $g = 0.6$ (hình b). Ở đây, chúng tôi chỉ xét các phonon quang mô tả bởi mô hình Einstein với

cảm ứng exciton tĩnh tăng khi giảm nhiệt độ. Trong vùng nhiệt độ thấp, khi giảm nhiệt độ thì hàm cảm ứng tăng mạnh và phân kỳ tại một giá trị nhiệt độ tới hạn T_c . Dấu hiệu phân kỳ của hàm cảm ứng thể hiện hệ chuyển sang trạng thái ngưng tụ exciton khi nhiệt độ đủ thấp: $T \leq T_c$. Còn khi $T > T_c$, năng lượng nhiệt quá lớn làm phá hủy hoàn toàn trạng thái liên kết

điện tử $c - f$ hình thành exciton nên trạng thái ngưng tụ bị suy yếu. Điều này được thể hiện bởi giá trị hữu hạn của hàm cảm ứng ở vùng nhiệt độ cao. Trong trường hợp này, hệ ổn định trong trạng thái plasma của các điện tử và lỗ trống không liên kết. Tăng tần số phonon, nhiệt độ tới hạn cho chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton giảm. Sự giảm giá trị của hàm cảm ứng exciton tĩnh khi tăng tần số phonon hoàn toàn phù hợp với dữ liệu thực nghiệm thu được trên dichalcogenide kim loại chuyển tiếp TiSe_2 . Trong vật liệu này, người ta quan sát thấy trạng thái ngưng tụ exciton tồn tại đồng thời với sự lệch mạng tinh thể và có liên quan đến sự mềm hóa phonon quang [19]. Trong đó, dữ liệu thực nghiệm thu được từ tán xạ nhiệt tia X thể hiện phonon mềm đi hay năng lượng của phonon giảm khi nhiệt độ tiến tới nhiệt độ chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton. Thật vậy, khi tăng

tần số phonon, năng lượng của phonon càng lớn. Khi dao động của phonon càng nhanh hơn chuyển động của điện tử thì phonon khó hỗ trợ sự kết cặp các điện tử $c - f$ hình thành exciton, dẫn tới xác suất ghép cặp điện tử $c - f$ hay exciton nhỏ hơn. Trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ vì vậy bị suy yếu, nhiệt độ chuyển pha trạng thái ngưng tụ giảm. So sánh Hình 1a và 1b chúng ta nhận thấy, khi tăng hằng số tương tác điện tử - phonon thì nhiệt độ chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton cũng tăng lên. Rõ ràng là phonon cũng đóng vai trò quan trọng trong việc hình thành và ngưng tụ của exciton. Đặc tính này minh họa rõ nét các quan sát thực nghiệm trên vật liệu $\text{TmSe}_{0.45}\text{Te}_{0.55}$ [17,18]. Khi áp suất đủ lớn, các dải $4f$ và $5d$ xen phủ nhau, khi đó dưới sự hỗ trợ của phonon, các điện tử $4f$ kết cặp với các điện tử $5d$ để tạo thành các exciton và có thể ngưng tụ ở nhiệt độ đủ thấp.



Hình 2: Giản đồ pha trạng thái cơ bản của mô hình trong mặt phẳng (U, g) khi ω_0 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.

Cuối cùng, để thấy rõ hơn ảnh hưởng của phonon lên trạng thái ngưng tụ exciton trong mô hình, từ kết quả khảo sát tính chất phân kỳ của hàm cảm ứng, chúng tôi thiết lập trên Hình 2 giản đồ pha của mô hình trong mặt phẳng (U, g) trong trạng thái cơ bản ứng với hai giá trị của tần số phonon. Giản đồ pha được thiết lập dựa trên khảo sát tính 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 hằng số tương tác điện tử - phonon tại vị trí phân kỳ của hàm cảm ứng. Giản đồ cho thấy, với một giá trị xác định của tần số phonon và hằng số tương tác điện tử - phonon, hệ chỉ tồn tại trong trạng thái ngưng tụ exciton (được biểu thị bởi vùng kẻ caro trên giản đồ) nếu thế tương tác Coulomb nằm trong khoảng giữa hai giá trị tới hạn U_{c1} và U_{c2} .

Chẳng hạn trong Hình 2a, với $\omega_0 = 2.0$ và $g = 0$ thì cặp giá trị của thế tương tác Coulomb tới hạn tương ứng là: $U_{c1} = 0.88$ và $U_{c2} = 3.53$. Kết quả này hoàn phù hợp với kết quả khảo sát sự hình thành và ngưng tụ exciton thông qua tính chất của tham số trật tự trạng thái ngưng tụ [10,11,13]. Khi $U < U_{c1}$ và hằng số tương tác điện tử- phonon chưa đủ lớn, hệ tồn tại trong trạng thái bán kim loại (SM) được mô tả bởi vùng gạch chéo trên giản đồ với các dải c và f xen phủ nhau. Nếu $U > U_{c2}$, do dịch chuyển Hartree tách dải hóa trị và dải dẫn, hệ chuyển sang trạng thái bán dẫn (SC) được mô tả bởi vùng gạch chéo bên phải giản đồ. Khi thế tương tác Coulomb có giá trị trong khoảng từ U_{c1} tới U_{c2} thì hệ ổn định trong trạng thái ngưng tụ exciton ở dạng BCS tương tự như trạng thái siêu dẫn của cặp Cooper trong vùng tương tác yếu hoặc ở dạng BEC khi U đủ lớn. Giao nhau của hai trạng thái ngưng tụ do đó cũng được thiết lập. Tăng hằng số tương tác điện tử - phonon, giá trị tới hạn U_{c1} giảm trong khi U_{c2} tăng. Điều đó có nghĩa vùng ngưng tụ exciton được mở rộng. Dưới sự hỗ trợ mạnh mẽ của phonon, các điện tử c và điện tử f dễ dàng kết cặp tạo thành exciton và có thể ngưng tụ khi nhiệt độ đủ thấp. Giản đồ cũng cho thấy trong trường hợp không có tương tác điện tử - phonon thì tần số phonon hầu như không ảnh hưởng tới sự hình thành trạng thái ngưng tụ (so sánh Hình 2a và 2b tại $g = 0$). Trong trường hợp này, exciton trong hệ ngưng tụ hoàn toàn dưới ảnh hưởng của tương tác Coulomb. Tăng tần số phonon thì hằng số tương tác điện tử - phonon tới hạn cũng tăng theo và vùng ngưng tụ bị thu hẹp lại. Điều này hoàn toàn phù hợp với các quan sát thực nghiệm trên vật liệu Ta_2NiSe_5 bằng phép đo quang phổ Raman với các mode phonon mềm [20]. Trong đó, kết quả cho thấy các phonon quang năng lượng thấp có vai trò thúc đẩy quá trình chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton. Rõ ràng là phonon có năng lượng cao sẽ làm giảm xác suất ghép cặp điện

tử $c - f$ hình thành exciton, do đó trạng thái ngưng tụ chỉ được thiết lập khi hằng số tương tác điện tử - phonon đạt giá trị đủ lớn. Mối quan hệ tỉ lệ của tần số phonon và hằng số tương tác điện tử - phonon tới hạn cũng đã được khẳng định trong các nghiên cứu trước đó của chúng tôi [21, 22]. Như vậy, giản đồ pha một lần nữa khẳng định phonon cũng đóng vai trò quan trọng như thế tương tác Coulomb trong việc thiết lập trạng thái ngưng tụ exciton trong hệ.

4. Kết luận

Trong bài báo này, chúng tôi đã khảo sát ảnh hưởng của phonon lên tính chất của hàm cảm ứng exciton hay sự hình thành trạng thái ngưng tụ exciton thông qua áp dụng lý thuyết trường trung bình cho mô hình Falicov-Kimball mở rộng có tương tác điện tử - phonon. Khi bỏ qua đóng góp của thăng giáng, chúng tôi đã rút ra hệ phương trình tự hợp cho phép xác định các giá trị kỳ vọng và từ đó tìm được hàm cảm ứng exciton của mô hình. Giải hệ phương trình tự hợp bằng phương pháp tính số, kết quả tính số khảo sát hàm cảm ứng exciton tĩnh cho thấy, cả phonon và thế tương tác Coulomb đều đóng vai trò quan trọng trong sự ổn định của hệ trong trạng thái ngưng tụ exciton ở nhiệt độ thấp. Giảm tần số phonon thì nhiệt độ tới hạn cho chuyển pha trạng thái ngưng tụ exciton tăng lên. Hệ ổn định trong trạng thái ngưng tụ exciton khi tần số phonon đủ nhỏ, hằng số tương tác điện tử - phonon đủ lớn và thế tương tác Coulomb trong khoảng giữa hai giá trị tới hạn. Giảm tần số phonon hay tăng hằng số tương tác điện tử - phonon thì vùng ngưng tụ exciton được mở rộng. Những nghiên cứu kỹ lưỡng hơn về ảnh hưởng của áp suất ngoài lên tính chất của hàm cảm ứng exciton sẽ được chúng tôi thực hiện 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] N. F. Mott. (1961). The transition to the metallic state. *Philos. Mag.* 6, 287.
- [2] R. Knox, in: F. Seitz, D. Turnbull (Eds.). (1963). *Solid State Physics*, Academic Press, New York, p. Suppl. 5 p. 100.
- [3] 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.
- [4] N. V. Phan, H. Fehske, and K. W. Becker. (2011). Excitonic resonances in the 2D extended Falicov-Kimball model. *Europhys. Lett.* 95, 17006.
- [5] 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.
- [6] T. Kaneko, T. Toriyama, T. Konishi, and Y. Ohta. (2013). Orthorhombic-tomonoclinic phase transition of Ta₂NiSe₅ induced by the Bose-Einstein condensation of excitons. *Phys. Rev. B*, 87, 035121.
- [7] F. J. Di Salvo, D. E. Moncton, and J. V. Waszczak. (1976). Electronic properties and superlattice formation in the semimetal TiSe₂. *Phys. Rev. B*, 14, 4321.
- [8] C. Monney *et al.* (2010). Temperature-dependent photoemission on 1T-TiSe₂: Interpretation within the exciton condensate phase model. *Phys. Rev. B*, 81, 155104.
- [9] H. Cercellier *et al.* (2007). Evidence for an excitonic insulator phase in 1T-TiSe₂. *Phys. Rev. Lett.* 99, 146403.
- [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. *Europhysics Letters* 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. *Journal of Electronic Materials* 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), 89–94.
- [13] Đỗ Thị Hồng Hải và Phan Văn Nhâm. (2018). Giảm độ 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.
- [14] K. Sugimoto et al. (2018). Strong Coupling Nature of the Excitonic Insulator State in Ta₂NiSe₅. *Phys. Rev. Lett.* 120, 247602.
- [15] Jinwon Lee et al. (2019). Strong interband interaction in the excitonic insulator phase of Ta₂NiSe₅. *Physical Review B* 99, 075408.
- [16] F. X. Bronold and H. Fehske. (2006). Possibility of an excitonic insulator at the semiconductor-semimetal transition. *Phys. Rev. B* 74, 165107.
- [17] P. Wachter and B. Bucher. (2013). Exciton condensation and its influence on the specific heat. *Physica B*, 408, 51.
- [18] P. Wachter. (2018). Exciton Condensation and Superfluidity in TmSe_{0.45}Te_{0.55}. *Advances in Materials Physics and Chemistry*, 8, 120-142.
- [19] F. Weber et al. (2011). Electron-phonon coupling and the soft phonon mode in TiSe₂. *Phys. Rev. Lett.*, 107, 266401.
- [20] Min-Jae Kim et al. (2020). Phononic soft mode behavior and a strong electronic background across the structural phase transition in the excitonic insulator Ta₂NiSe₅. *Physical Review Research* 2, 042039(R).
- [21] Thi-Hong-Hai-Do, Huu-Nha-Nguyen, Thi-Giang-Nguyen and Van-Nham Phan. (2016). Temperature effects in excitonic condensation driven by the lattice distortion. *Physica Status Solidi B* 253, 1210.
- [22] V.-N. Phan, K. W. Becker, and H. Fehske. (2013). Exciton condensation due to electron-phonon interaction. *Phys. Rev. B*, 88, 205123.