

Ảnh hưởng của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng thái điện môi exciton trong các hợp chất đất hiếm chalcogenide

Nguyễn Thị Hậu, Đỗ Thị Hồng Hải*
Trường Đại học Mở - Địa chất

TÓM TẮT

Trong bài báo này, chúng tôi khảo sát sự hình thành trạng thái điện môi exciton thông qua việc khảo sát hàm cảm ứng exciton trong mô hình Falicov – Kimball mở rộng, khi thay đổi áp suất ngoài tác động lên hệ. Các thông số khảo sát được chọn phù hợp với trạng thái của hệ điện tử trong các hợp chất đất hiếm chalcogenide. Chúng tôi sử dụng gần đúng Hartree-Fock để tính toán giải tích, sau đó thiết lập chương trình tính số để khảo sát hàm cảm ứng exciton tĩnh. Các kết quả khảo sát khẳng định vai trò của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng thái điện môi exciton trong các hợp chất đất hiếm chalcogenide.

Từ khóa: Điện môi exciton; gần đúng Hartree-Fock; mô hình Falicov – Kimball mở rộng; Hàm cảm ứng exciton

1. Đặt vấn đề

Exciton được xem là giả hạt boson, hình thành do sự kết cặp của điện tử dải dẫn và lỗ trống dải hóa trị nhờ tương tác Coulomb, tồn tại trong điện môi, chất bán dẫn và một số chất lỏng. Khi mật độ đủ lớn và nhiệt độ đủ thấp, các exciton có thể ngưng tụ trong một trạng thái lượng tử và chuyển cấu hình của bán kim loại hoặc bán dẫn sang trạng thái điện môi tương ứng, gọi là trạng thái điện môi exciton (excitonic insulator – EI) (Mott, 1961). Cho đến nay những nghiên cứu về trạng thái điện môi exciton vẫn đang thu hút sự chú ý của các nhà khoa học trong cả lý thuyết và thực nghiệm. Về mặt lý thuyết, người ta thường sử dụng các mô hình hai dải năng lượng để khảo sát trạng thái EI, trong đó mô hình Falicov-Kimball mở rộng (Extended Falicov-Kimball model – EFKM) là mô hình được sử dụng nhiều nhất (Ihle và nnk, 2008; Phan Văn Nhâm và nnk, 2011; Zenker và nnk, 2010). Đây là mô hình mô tả tương tác giữa điện tử linh động c và điện tử định xứ f bởi tương tác Coulomb có tính tới nhảy nút của điện tử trên mức f và thừa nhận mỗi cặp điện tử $c - f$ tương đương với một trạng thái exciton. Về mặt thực nghiệm, do trạng thái EI có thời gian sống rất ngắn so với thang giây nhiệt, chỉ cỡ pico giây đến mili giây, nên việc tìm ra các hệ vật liệu mà exciton có thể tồn tại trong thời gian đủ lớn để đạt trạng thái ngưng tụ là hết sức cần thiết. Một trong những hệ vật liệu triển vọng để quan sát trạng thái EI là hợp chất đất hiếm chalcogenide (Neuenschwander và Wachter, 1990; Bucher và nnk, 1991; Wachter và nnk, 2004). Kim loại đất hiếm và hợp chất của chúng được sử dụng nhiều trong các thiết bị hàng ngày phục vụ đời sống của con người như nam châm, pin mặt trời, bộ nhớ máy tính.

Trong bài báo này, chúng tôi áp dụng gần đúng Hartree-Fock cho mô hình EFKM để khảo sát ảnh hưởng của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng thái EI trong các hợp chất đất hiếm chalcogenide, thông qua việc khảo sát tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Hàm cảm ứng exciton tĩnh thể hiện sự thăng giáng của exciton trong hệ, do đó sự tồn tại của trạng thái EI được thể hiện bởi sự phân kỳ của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Trong các nghiên cứu trước đây, khi khảo sát hàm cảm ứng exciton tĩnh theo nhiệt độ và thể tương tác Coulomb, chúng tôi đã khẳng định trạng thái EI được hình thành tại vùng nhiệt độ thấp và trong khoảng giữa hai giá trị tới hạn của thể tương tác Coulomb (Đỗ Thị Hồng Hải và Nguyễn Thị Hậu, 2021; Nguyễn Thị Hậu và nnk, 2021). Với các kết quả đã nghiên cứu đó, trong bài báo này chúng tôi tiếp tục khảo sát sự phụ thuộc của hàm cảm ứng exciton tĩnh vào thể tương tác Coulomb tại nhiệt độ không khi thay đổi giá trị áp suất ngoài tác động lên hệ. Từ đó ta có thể đánh giá ảnh hưởng của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng thái EI trong các hợp chất đất hiếm chalcogenide.

Bài báo được chia thành 4 phần. Trong phần tiếp theo của bài báo, chúng tôi trình bày phương pháp tính toán giải tích để tìm hàm cảm ứng exciton bằng việc áp dụng phương pháp gần đúng Hartree-Fock trong mô hình EFKM. Trên cơ sở kết quả tính toán giải tích, chúng tôi thiết lập chương trình tính số để tìm giá trị cụ thể của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Các kết quả tính số và thảo luận được trình bày trong phần 3 của bài báo. Phần cuối cùng của bài báo, chúng tôi trình bày các kết luận.

* Tác giả liên hệ

Email: dothihonghai@humg.edu.vn

2. Cơ sở lý thuyết và phương pháp nghiên cứu

Mô hình Falicov-Kimball nguyên gốc là mô hình mô tả tương tác giữa điện tử linh động c và điện tử định xứ f bởi tương tác Coulomb (Falicov và Kimball, 1969; Ramirez và nnk, 1970), thường được dùng rộng rãi trong nghiên cứu chuyển pha kim loại – điện môi. Còn mô hình EFKM là mô hình có tính tới nhảy nút của điện tử trên mức f với Hamiltonian được biểu diễn trong không gian xung lượng như sau:

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

trong đó: $c_{\mathbf{k}}^\dagger(c_{\mathbf{k}})$ và $f_{\mathbf{k}}^\dagger(f_{\mathbf{k}})$ tương ứng là toán tử sinh (hủy) của các điện tử c và điện tử f không spin mang xung lượng $\mathbf{k}$, chúng mô tả năng lượng của hệ điện tử ở dải dẫn và dải hóa trị khi không tương tác. $\varepsilon_{\mathbf{k}}^{c(f)}$ là các năng lượng kích thích điện tử c và f được cho bởi:

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

với: $\varepsilon^{c(f)}$ là năng lượng trên một nút của điện tử c và điện tử f , $t^{c(f)}$ là tích phân nhảy nút tương ứng của điện tử c và điện tử f , thể hiện độ linh động của các điện tử c, f . Trong mạng vuông hai chiều, $\gamma_{\mathbf{k}} = 2(\cos k_x + \cos k_y)$ là bước nhảy trong mạng tinh thể và μ là thế hóa học.

Số hạng cuối cùng trong phương trình (1) mô tả tương tác Coulomb giữa điện tử c trên dải dẫn và điện tử f ở dải hóa trị với cường độ thể tương tác Coulomb là U , trong đó N là số nút mạng tinh thể. Để giải Hamiltonian (1) chúng tôi áp dụng phương pháp gần đúng Hartree-Fock bằng việc giới thiệu toán tử thăng giáng $\delta A = A - \langle A \rangle$, sau đó viết lại phần toán tử thể hiện tương tác Coulomb trong phương trình (1) dưới dạng sau:

$$c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} = [\langle f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} + \langle c_{\mathbf{k}'}^\dagger c_{\mathbf{k}'} \rangle f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}}] + [\langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle f_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} + \langle f_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} \rangle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}}] + [\langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle \langle f_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} \rangle - \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger c_{\mathbf{k}'} \rangle \langle f_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle] \quad (3)$$

Bỏ qua những hằng số xuất hiện từ phương trình (3) và thay (3) vào (1) chúng tôi thu được Hamiltonian trong gần đúng Hartree-Fock như sau:

$$\mathcal{H}_{HF} = \sum_{\mathbf{k}} \bar{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^c c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{k}} \bar{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f f_{\mathbf{k}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + \Lambda \sum_{\mathbf{k}} (c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} + f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) \quad (4)$$

với $\bar{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^c$ và $\bar{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f$ là các năng lượng tán sắc tái chuẩn hóa khi có đóng góp của độ dịch Hartree có dạng:

$$\bar{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^{c(f)} = \varepsilon_{\mathbf{k}}^{c(f)} + U n^f(c) \quad (5)$$

trong đó: n^f và n^c tương ứng là mật độ điện tử f và mật độ điện tử c được xác định bởi hàm phân bố Fermi-Dirac $f^F(\epsilon) = \frac{1}{1+e^{\beta\epsilon}}$ như sau:

$$n^f = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} f^F(\bar{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^f) \quad (6)$$

$$n^c = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} f^F(\bar{\varepsilon}_{\mathbf{k}}^c) \quad (7)$$

với $\beta = 1/T$ là nghịch đảo của nhiệt độ.

Trong phương trình (4), Λ biểu diễn trạng thái liên kết hiệu dụng của cặp điện tử c - f , và được xem là tham số trật tự trạng thái ngưng tụ exciton được xác định bởi:

$$\Lambda = -\frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}} \rangle \quad (8)$$

Việc nghiên cứu trạng thái EI thông qua tính chất của tham số trật tự đã được chúng tôi khảo sát chi tiết trong các nghiên cứu trước (Đỗ Thị Hồng Hải và nnk, 2017; Đỗ Thị Hồng Hải và nnk, 2018; Đỗ Thị Hồng Hải và Phan Văn Nhâm, 2018; Đỗ Thị Hồng Hải và Phan Văn Nhâm, 2018; Đỗ Thị Hồng Hải và nnk, 2019). Trong bài báo này, chúng tôi khảo sát sự hình thành trạng thái EI trong hệ thông qua phân tích tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh. Hàm cảm ứng exciton trong không gian xung lượng được viết dưới dạng sau:

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{(\omega)} \quad (9)$$

Để tính hàm cảm ứng exciton, chúng tôi sử dụng Hamiltonian trong phương trình (1) viết phương trình chuyển động cho hàm Green hai hạt dưới dạng

$$\omega \langle \langle f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{(\omega)} = \langle [f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'}] \rangle + \langle \langle [f_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}, \mathcal{H}]; c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^\dagger f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{(\omega)} \quad (10)$$

Thay Hamiltonian trong phương trình (1) vào (10) ta được

$$\begin{aligned}
& \omega \langle \langle f_{\mathbf{k}}^+ c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^+ f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{(\omega)} \\
&= \langle [f_{\mathbf{k}}^+ c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^+ f_{\mathbf{k}'}] \rangle \\
&+ \langle \left(\sum_{\mathbf{k}_1} [f_{\mathbf{k}}^+ c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; \varepsilon_{\mathbf{k}_1}^c c_{\mathbf{k}_1}^+ c_{\mathbf{k}_1}] + \sum_{\mathbf{k}_1} [f_{\mathbf{k}}^+ c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; \varepsilon_{\mathbf{k}_1}^f f_{\mathbf{k}_1}^+ f_{\mathbf{k}_1}] \right. \\
&\quad \left. + \frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}_2, \mathbf{k}_1, \mathbf{q}_1} [f_{\mathbf{k}}^+ c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; c_{\mathbf{k}_2+\mathbf{q}_1}^+ c_{\mathbf{k}_1} f_{\mathbf{k}_1-\mathbf{q}_1}^+ f_{\mathbf{k}_2}] \right); c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^+ f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{(\omega)}
\end{aligned} \tag{11}$$

Sử dụng gần đúng pha ngẫu nhiên để tính toán, phương trình (11) được viết lại thành:

$$\begin{aligned}
& (\omega - \omega_{\mathbf{k}}^{cf}(\mathbf{q})) \langle \langle f_{\mathbf{k}}^+ c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}; c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^+ f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{(\omega)} = (\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle - \langle n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c \rangle) \\
& - \frac{U}{N} (\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle - \langle n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c \rangle) \sum_{\mathbf{k}_2} \langle \langle f_{\mathbf{k}_2}^+ c_{\mathbf{k}_2+\mathbf{q}}; c_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}}^+ f_{\mathbf{k}'} \rangle \rangle_{(\omega)}
\end{aligned} \tag{12}$$

trong đó $\omega_{\mathbf{k}}^{cf}(\mathbf{q}) = \varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c - \varepsilon_{\mathbf{k}}^f$, với $\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c$ và $\varepsilon_{\mathbf{k}}^f$ được xác định trong phương trình (5), $\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle = \langle f_{\mathbf{k}}^+ f_{\mathbf{k}} \rangle$ và $\langle n_{\mathbf{k}}^c \rangle = \langle c_{\mathbf{k}}^+ c_{\mathbf{k}} \rangle$ được xác định trong phương trình (6) và (7)

Lấy tổng hai vế phương trình (12) theo $\mathbf{k}$ và thay tổng $\mathbf{k}$ với $\mathbf{k}_2$, chúng tôi thu được hàm cảm ứng exciton

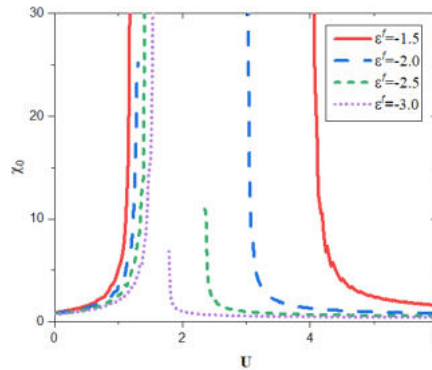
$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle - \langle n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c \rangle}{\omega - \omega_{\mathbf{k}}^{cf}(\mathbf{q})}}{1 + \frac{U}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\langle n_{\mathbf{k}}^f \rangle - \langle n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^c \rangle}{\omega - \omega_{\mathbf{k}}^{cf}(\mathbf{q})}} \tag{13}$$

3. Kết quả và thảo luận

Trong phần này, chúng tôi trình bày kết quả tính số để thảo luận ảnh hưởng của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng thái EI trong các hợp chất đất hiếm chalcogenide thông qua mô hình Falicov–Kimball mở rộng. Ở đây, chúng tôi chỉ xét hàm cảm ứng exciton ứng exciton với $\omega \rightarrow 0$ hay còn gọi là hàm cảm ứng exciton tĩnh, và chỉ xét các exciton có xung lượng $\mathbf{q} = 0$ tham gia vào hình thành pha EI. Tức là chúng tôi chỉ nghiên cứu sự hình thành trạng thái EI trong hệ thông qua xem xét tính chất của hàm cảm ứng exciton tĩnh $\chi_0 = \chi(0, 0)$.

Dựa trên kết quả tính toán giải tích ở phần 2, chúng tôi thiết lập chương trình tính số để giải tự hợp xác định các giá trị kì vọng, từ đó tính được hàm cảm ứng exciton tĩnh từ phương trình (13). Trong bài báo này, chúng tôi chọn hệ đơn vị tự nhiên với $\hbar = c = k_B = 1$ và tính toán cho hệ hai chiều gồm $N = 500 \times 500$ nút mạng, đồng thời chúng tôi chọn $t^c = 1$ là đơn vị của năng lượng, còn $t^f = 0.2$ để phù hợp với trạng thái của hệ điện tử trong hợp chất đất hiếm chalcogenide.

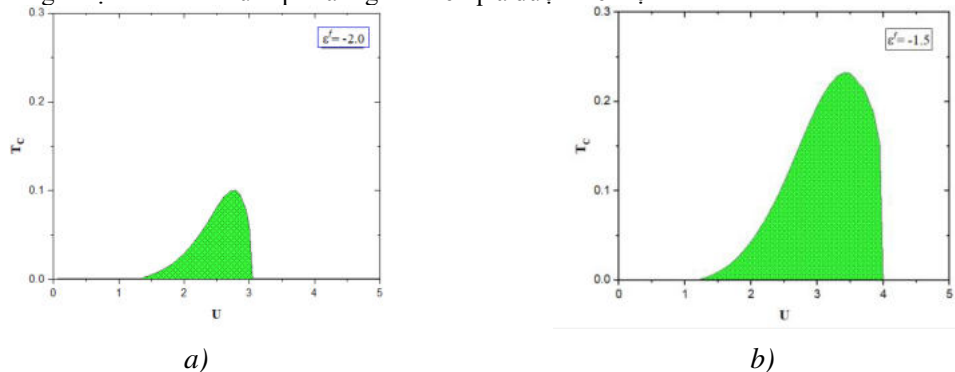
Trong các nghiên cứu trước đây, chúng tôi đã khẳng định trạng thái điện môi exciton chỉ được hình thành ở nhiệt độ thấp trong khoảng giữa hai giá trị tới hạn của thể tương tác Coulomb khi áp suất ngoài đủ lớn (Đỗ Thị Hồng Hải và Nguyễn Thị Hậu, 2021; Nguyễn Thị Hậu và nnk, 2021). Do đó, trong bài báo này, chúng tôi tiếp tục khảo sát hàm cảm ứng exciton tĩnh theo thể tương tác Coulomb ứng với các giá trị khác nhau của năng lượng tại nút ε^f của điện tử f trong trạng thái cơ bản tức là tại nhiệt độ $T = 0$. Trong bài toán này, chúng tôi chọn $\varepsilon^c = 0$, do đó thay đổi ε^f tức là thay đổi mức độ xen phủ giữa hai dải năng lượng của điện tử c và điện tử f , thể hiện sự thay đổi của áp suất ngoài tác động lên hệ, kết quả được thể hiện trên Hình 1.



Hình 1. Khảo sát hàm cảm ứng exciton tĩnh χ_0 theo U khi thay đổi giá trị ε^f tại $T = 0$

Hình 1 cho thấy, trong trạng thái cơ bản, tại mỗi giá trị ε^f xác định, hàm cảm ứng exciton tĩnh phân kì tại hai giá trị tới hạn của thể tương tác Coulomb U_{c1} và U_{c2} . Điều này một lần nữa khẳng định trạng thái EI chỉ được hình thành trong khoảng giữa hai giá trị của thể tương tác Coulomb U_{c1} và U_{c2} . Điều này hoàn toàn phù hợp với các kết quả đã công bố trước đây của chúng tôi (Đỗ Thị Hồng Hải và Nguyễn Thị Hậu, 2021; Nguyễn Thị Hậu và nnk, 2021). Khi $U < U_{c1}$, hệ trong pha bán kim loại. Tăng U đủ lớn sao cho $U \geq U_{c1}$, tương tác Coulomb đủ lớn để có thể tạo ra sự kết cặp điện tử $c-f$, do đó trạng thái EI được hình thành. Khi U tăng làm tăng khả năng kết cặp điện tử $c-f$, và do đó hệ ổn định trong trạng thái EI khi $U_{c1} \leq U \leq U_{c2}$. Tuy nhiên, U tăng đồng thời cũng làm tăng sự chia tách giữa dải dẫn và dải hóa trị do đó hệ chuyển sang trạng thái bán dẫn khi $U > U_{c2}$. Khi tăng giá trị của ε^f thì U_{c2} tăng mạnh trong khi U_{c1} giảm, hay nói cách khác là vùng ngưng tụ exciton được mở rộng, điều này có thể giải thích theo cấu trúc vùng năng lượng. Thật vậy, khi ε^f tăng, sự xen phủ giữa các dải c và dải f tăng lên làm tăng cường khả năng ghép cặp điện tử $c-f$ hình thành trạng thái kết hợp của exciton nên vùng bán kim loại và bán dẫn bị thu hẹp lại, do đó vùng ngưng tụ exciton được mở rộng.

Để thấy rõ hơn điều này, chúng tôi tiếp tục biểu thị giản đồ pha trạng thái EI trong mặt phẳng (U - T_c) ứng với hai giá trị khác nhau của áp suất ngoài. Kết quả được thể hiện trên Hình 2



Hình 2: Giản đồ pha trạng thái EI trong mặt phẳng (U - T_c) ứng với hai giá trị khác nhau của ε^f

Kết quả trên Hình 2 cho thấy, với giá trị áp suất ngoài chúng tôi chọn đủ lớn, hệ tồn tại ở trạng thái EI trong vùng nhiệt độ thấp dưới T_c và trong khoảng giữa hai giá trị tới hạn của cường độ thể tương tác Coulomb U_{c1} và U_{c2} . Vùng ngưng tụ thu hẹp lại khi nhiệt độ tăng, do năng lượng nhiệt lớn làm phá hủy một phần trạng thái liên kết của điện tử-lỗ trống hình thành exciton. Trạng thái liên kết của điện tử-lỗ trống bị phá hủy hoàn toàn ở nhiệt độ cao, khi đó hệ tồn tại trong trạng thái plasma của điện tử và lỗ trống không liên kết. Trên Hình 2a, trong miền giới hạn của thể tương tác Coulomb ($U < 2.5$), nhiệt độ chuyển pha trạng thái EI tăng khi tương tác Coulomb tăng từ U_{c1} . Ngược lại, trong giới hạn của thể tương tác Coulomb lớn ($U > 2.5$), nhiệt độ chuyển pha trạng thái EI giảm khi thể tương tác Coulomb tăng. So sánh kết quả giữa Hình 2a và 2b, chúng tôi thấy khi ε^f tăng, nhiệt độ chuyển pha trạng thái EI tăng, giá trị tới hạn của thể năng tương tác Coulomb U_{c1} giảm trong khi U_{c2} tăng, do đó vùng ngưng tụ được mở rộng. Thật vậy, năng lượng tại nút của điện tử f tăng đồng nghĩa với áp suất ngoài tác động lên hệ tăng, làm tăng mức độ xen phủ của dải c và dải f , dẫn tới tăng khả năng kết cặp của điện tử $c-f$ hình thành exciton. Do đó nhiệt độ chuyển pha trạng thái EI tăng lên và vùng ngưng tụ được mở rộng.

Các kết quả khảo sát ảnh hưởng của áp suất ngoài lên chuyển pha trạng thái EI trên giản đồ pha Hình 1 và Hình 2 hoàn toàn phù hợp với quan sát thực nghiệm trên các vật liệu đất hiếm chalcogenide $\text{TmSe}_{0.45}\text{Te}_{0.55}$ và $\text{Sm}_{0.90}\text{La}_{0.10}\text{S}$ (Neuenschwander và Wachter, 1990; Wachter và nnk, 2004; Wachter, 2018). Ở áp suất đủ lớn, các dải $4f$ và $5d$ xen phủ nhau, các điện tử ở dải $4f$ được kích thích lên vùng dẫn $5d$, do đó các điện tử ở vùng dẫn $5d$ có thể kết cặp với lỗ trống của vùng $4f$ để tạo thành exciton và trạng thái EI có thể được hình thành nếu nhiệt độ đủ thấp. Bên cạnh đó, số liệu thực nghiệm trên các vật liệu $\text{Sm}_{1-x}\text{La}_x\text{S}$ ($x = 0.10, 0.25, 0.35$) và $\text{Sm}_{1-y}\text{Tm}_y\text{S}$ ($y = 0.10, 0.15$) (Jung và Wachter, 1997) cũng cho thấy khe năng lượng được mở rộng khi áp suất ngoài tăng, thể hiện sự mở rộng của vùng ngưng tụ exciton.

4. Kết luận

Trong bài báo này, chúng tôi đã khảo sát ảnh hưởng của áp suất ngoài lên trạng thái điện môi exciton trong các hợp chất đất hiếm chalcogenide thông qua khảo sát hàm cảm ứng exciton tĩnh trong mô hình Falicov-Kimball mở rộng. Sau khi tính toán giải tích được hệ các phương trình tự hợp chứa các tham số của mô hình và hàm cảm ứng exciton, chúng tôi đã thiết lập chương trình tính số để khảo sát sự phụ thuộc của hàm cảm ứng exciton tĩnh theo thể tương tác Coulomb khi thay đổi áp suất ngoài tác động lên hệ. Các kết quả tính số cho thấy tại nhiệt độ $T = 0$ ứng với mỗi giá trị của năng lượng tại nút ε^f của điện tử f xác định, hàm cảm ứng exciton tĩnh phân kì tại hai giá trị tới hạn của thể tương tác Coulomb. Khi tăng giá

trị của ϵ^f , tức tăng áp suất ngoài tác động lên hệ thì nhiệt độ chuyển pha trạng thái EI tăng lên và miền giới hạn của thể tương tác Coulomb mở rộng thể hiện vùng ngưng tụ exciton được mở rộng. Các kết quả của bài báo cung cấp thêm cho chúng ta cơ sở về ảnh hưởng của áp suất ngoài lên sự hình thành trạng thái điện môi exciton. Trong các nghiên cứu tiếp theo, chúng tôi sẽ khảo sát chi tiết hơn khi tính tới ảnh hưởng của tương tác điện tử - phonon trong mô hình.

Tài liệu tham khảo

- B. Bucher, P. Steiner, and P. Wachter, 1991. *Excitonic insulator phase in $TmSe_{0.45}Te_{0.55}$* , Physical Review Letters, 67: 2717-2727.
- Đỗ Thị Hồng Hải, Bùi Đình Hội and Phan Văn Nhâm, 2017. *Phonon effects in the excitonic condensation induced in the extended Falicov-Kimball model*, Europhysics Letters, 119: 47003.
- Đỗ Thị Hồng Hải, Nguyễn Hữu Nha and Phan Văn Nhâm, 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: 2677-2684.
- Đỗ Thị Hồng Hải, Nguyễn Thị Hậu, 2021. *Phase Diagrams of the Excitonic Insulator State: Analyzing the Excitonic Susceptibility*. Journal of the Polish Mineral Engineering Society, 1: 199-206.
- Đỗ Thị Hồng Hải, Nguyễn Thị Hậu, Hồ Quỳnh Anh, 2018. *Ảnh hưởng của nhiệt độ lên trạng thái ngưng tụ exciton trong mô hình Falicov-Kimball mở rộng có xét đến tương tác điện tử - phonon*, Tạp chí Nghiên cứu Khoa học và Công nghệ Quân sự, Số Đặc san CBES2, 204-209.
- 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 - Công nghệ, Đại học Duy Tân, 6: 89-94.
- 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 - Công nghệ, Đại học Duy Tân, 6: 95-100.
- L. M. Falicov and J. C. Kimball, 1969. *Simple model for semiconductor-metal transitions: SrB_6 and transition-metal oxides*, Physical Review Letters, 22: 997.
- A. Jung, P. Wachter, 1997. *Pressure-driven metal-insulator transition in La- and Tm doped SrS by exciton condensation*, Physica B, 230-232: 725-726.
- 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*, Physical Review B, 78: 193103.
- N. F. Mott, 1961. *The transition to the metallic state*, Philosophical Magazine, 6: 287-309.
- J. Neuenschwander and P. Wachter, 1990. *Pressure-driven semiconductor-metal transition in intermediate-valence $TmSe_{1-x}Te_x$ and the concept of an excitonic insulator*, Physical Review B, 41: 12693.
- Nguyễn Thị Hậu, Lê Tiến Hà, Đỗ Thị Hồng Hải, 2021. *Ảnh hưởng của độ linh động của điện tử lên trạng thái điện môi exciton trong các hợp chất đất hiếm chalcogenide*, TNU Journal of Science and Technology, 226: 150-157.
- Phan Văn Nhâm, H. Fehske, and K. W. Becker, 2011. *Excitonic resonances in the 2D extended Falicov-Kimball model*, Europhysics Letter, 95: 17006.
- R. Ramirez, L. M. Falicov, and J. C. Kimball, 1970. *Metal-insulator transitions: A simple theoretical model*. Physical Review B, 2: 3383.
- P. Wachter, B. Bucher, and J. Malar, 2004. *Possibility of a superfluid phase in a Bose condensed excitonic state*, Physical Review B, 69: 094502.
- P. Wachter, 2018. *Exciton Condensation and Superfluidity in $TmSe_{0.45}Te_{0.55}$* , Advances in Materials Physics and Chemistry, 8: 120-142.
- 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*, Physical Review B, 81: 115122.

ABSTRACT

Effects of the external pressure on the excitonic insulator state in rare-earth chalcogenides

Nguyen Thi Hau, Do Thi Hong Hai*

Hanoi University of Mining and Geology

In this paper, we have considered effects of the external pressure on the excitonic insulator state via analyzing the static excitonic susceptibility function in the extended Falicov-Kimball model. By applying

the Hartree-Fock approximation, we have obtained the excitonic susceptibility function of the model. Basing on the analytical calculation, we have set up a numerical calculation program to investigate the static excitonic susceptibility function where the parameters are chosen in accordance with the situation of the electron system in rare-earth chalcogenides. Our results confirm the effect of the external pressure on the formation of the excitonic insulator state in rare-earth chalcogenide.

Keywords: Excitonic insulator, Hartree-Fock approximation, The extended Falicov–Kimball model, Excitonic susceptibility