TẠP CHÍ KHOA HỌC
TRƯỜNG ĐẠI HỌC SƯ PHẠM TP HỒ CHÍ MINH

HO CHI MINH CITY UNIVERSITY OF EDUCATION
JOURNAL OF SCIENCE

Tập 21, Số 2 (2024): 176-186

Vol. 21, No. 2 (2024): 176-186

ISSN: 2734-9918

Website: https://journal.hcmue.edu.vn

https://doi.org/10.54607/hcmue.js.21.2.4054(2024)

Bài báo nghiên cứu

NĂNG LƯỢNG EXCITON TRẠNG THÁI CƠ BẢN TRONG ĐƠN LỚP CHALCOGEN ĐÔI KIM LOẠI CHUYỂN TIẾP

Nguyễn Ngọc Huy, Phan Ngọc Hưng, Đinh Thị Hạnh*

Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

**Tác giả liên hệ: Đinh Thị Hạnh – Email: hanhdt@hcmue.edu.vn*

Ngày nhận bài: 11-12-2023; ngày nhận bài sửa: 16-01-2024; ngày duyệt đăng: 18-01-2024

TÓM TẮT

Sử dụng phương pháp lí thuyết nhiễu loạn có điều tiết (Modulated Perturbation Method – MPM) ở gần đúng bậc hai để giải phương trình Schrödinger, chúng tôi thu được biểu thức giải tích cho năng lượng exciton ở trạng thái cơ bản trong đơn lớp chalcogen đôi kim loại chuyển tiếp (Transition Metal Dichalcogenide – TMDC). Kết quả thu được có tính tổng quát cho nhiều loại TMDC khác nhau. Việc kiểm tra độ chính xác cho hai loại TMDC là WS_2 và WSe_2 bằng cách so sánh với kết quả chính xác bằng số cho thấy sai số của biểu thức năng lượng giải tích dưới 0.5%. Đây là kết quả có ý nghĩa khoa học và thúc đẩy việc tiếp tục nghiên cứu cho các trạng thái kích thích cao hơn.

Từ khóa: exciton; phương pháp toán tử FK; phương pháp nhiễu loạn có điều tiết; TMDC

1. Mở đầu

Trong những năm gần đây, sự thành công trong việc cô lập được vật liệu hai chiều tạo ra các đơn lớp bán dẫn, mở ra nhiều hướng nghiên cứu cả lí thuyết lẫn thực nghiệm. Trong số các vật liệu tiên tiến hai chiều đó, được quan tâm rất lớn là đơn lớp chalcogen đôi kim loại chuyển tiếp (Transition Metal DiChalcogenide – TMDC) với các tính chất điện tử và quang học độc đáo. Trong bán dẫn đơn lớp TMDC thì việc hình thành exciton chiếm ưu thế trong các chuyển dời quang học, nên exciton ảnh hưởng đến tính chất quang của vật liệu. Exciton là một giả hạt bao gồm một electron mang điện tích âm và một lỗ trống mang điện tích dương tương tác Coulomb với nhau tạo thành một trạng thái liên kết trong chất bán dẫn. Phổ năng lượng của exciton trong đơn lớp TMDC được nghiên cứu rộng rãi cả lí thuyết lẫn thực nghiệm (Chernikov et al., 2014; Henriques et al., 2021; Lin et al., 2022; Liu et al., 2019; Stier et al., 2018; Zhu et al., 2015). Đặc biệt, nhóm nghiên cứu Trường Đại

Cite this article as: Nguyen Ngoc Huy, Phan Ngoc Hung, & Dinh Thi Hanh (2024). Energy spectra of exciton for ground-state in monolayer transition-metal dichalcogenides. *Ho Chi Minh City University of Education Journal of Science, 21*(2), 176-186.

học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh đã phát triển phương pháp số và áp dụng thành công cho exciton trong đơn lớp TMDC đặt trong từ trường với kết quả có độ chính xác cao, lên đến 15 chữ số thập phân (Hoang et al., 2013; Ly et al., 2023; Nguyen et al., 2019).

Ngoài nghiệm số, nghiệm giải tích cho bài toán này có tầm quan trọng đặc biệt và bắt đầu được chú ý (Berkelbach et al., 2013; Molas et al., 2019; Nguyen-Truong, 2022) do các ứng dụng tiềm năng cho việc trích xuất thông tin vật liệu TMDC. Để có được nghiệm giải tích trong các công trình (Berkelbach et al., 2013; Molas et al., 2019; Nguyen-Truong, 2022), các tác giả đã thay đổi thế tương tác Keldysh (Keldysh et al., 1979) bằng các gần đúng khác. Trong khi đó, nhiều công trình đã chỉ ra thế tương tác Keldysh mô tả rất tốt tương tác electron-lỗ trống trong đơn lớp bán dẫn (Chernikov et al., 2014; Stier et al., 2018; Zhu et al., 2015). Ngoài ra, các biểu thức giải tích trong (Berkelbach et al., 2013; Molas et al., 2019; Nguyen-Truong, 2022) có độ chính xác chưa thật sự cao. Do vậy, việc tìm năng lượng giải tích có độ chính xác cao cho exciton trong đơn lớp TMDC với thế tương tác Keldysh còn mang tính thời sự.

Công trình này được thực hiện do các điều kiện sau. Trước tiên, phương pháp toán tử FK (Feranchuk et al., 2015) áp dụng cho exciton trong đơn lớp TMDC (Hoang et al., 2013; Ly et al., 2023; Nguyen et al., 2019) cho phép thu được biểu thức giải tích cho tất cả các yếu tố ma trận, kể cả thành phần liên quan đến thế tương tác Keldysh. Ngoài ra, công trình (Nguyen et al., 2023) mới đây đã chỉ ra phương pháp nhiễu loạn với sự điều tiết bằng tham số tự do có thể cho nghiệm chính xác cao chỉ với bổ chính bậc hai. Như vậy, lí thuyết nhiễu loạn có điều tiết (Modulated Perturbation Method – MPM) này hứa hẹn cho lời giải giải tích thích hợp. Chúng tôi sử dụng phương pháp MPM tìm nghiệm giải tích cho exciton hai chiều trong đơn lớp TMDC với thế tương tác Keldysh và công bố trong bài báo này kết quả cho trạng thái 1s. Kết quả thu được so sánh với kết quả tính số ở công trình (Ly et al., 2023) cho sai lệch không quá 0.5%, chứng tỏ phương pháp tính là đáng tin cậy.

2. Phương pháp

2.1. Phương trình Schrödinger

Phương trình Schrödinger của exciton trung hoà trong đơn lớp TMDC đã được đưa ra trong công trình (Ly et al., 2023) qua phép biến đổi Levi-Civita. Đặc biệt trong công trình (Ly et al., 2023), thế Keldysh đã được biểu diễn giải tích qua phép biến đổi Laplace, rất thuận tiện cho tính toán đại số. Chúng tôi đã tính toán lại các phương trình chính trong công trình (Ly et al., 2023) phục vụ cho các tính toán trong bài báo này.

Phương trình Schrödinger cho exciton hai chiều có dạng

$$\left\{\frac{1}{2\mu}\hat{\mathbf{p}}^2 + \hat{V}_{h-e}(r) - E\right\}\psi(\mathbf{r}) = 0\,, \tag{1}$$

với khối lượng hiệu dụng của exciton $\mu = m_e^* m_h^* / (m_e^* + m_h^*)$, tỉ số của khối lượng giữa electron và lỗ trống $\rho = m_e^* / m_h^*$. Thế tương tác điện tử và lỗ trống $\hat{V}_{h-e}(r)$ được mô tả bởi thế Keldysh (Keldysh et al., 1979) và được viết trong công trình (Ly et al., 2023) dưới dạng biến đổi Laplace. Ở đây, $m_e^*,\ m_h^*$ lần lượt là khối lượng hiệu dụng của electron và lỗ trống trong đơn lớp TMDC.

Phương trình (1) có thể đưa về dạng không thứ nguyên với bán kính Bohr hiệu dụng $a_0^* = 4\pi\varepsilon_0\hbar^2 / \mu e^2$. Sau đó, phép biến đổi Levi-Civita: $x = u^2 - v^2,\ y = 2uv$ chuyển phương trình không thứ nguyên từ không gian *xy* sang phương trình trong không gian *uv* như sau

$$\left\{-\frac{1}{8}\left(\frac{\partial^2}{\partial u^2}+\frac{\partial^2}{\partial v^2}\right)-E\left(u^2+v^2\right)+\hat{V}_K(u,v)\right\}\psi(u,v)=0, \tag{2}$$

trong đó

$$\hat{V}_K(u,v) = -\frac{1}{\kappa}\int_0^{+\infty}\frac{dq}{\sqrt{1+\alpha^2q^2}}\,(u^2+v^2)e^{-q(u^2+v^2)}, \tag{3}$$

với κ là hằng số điện môi trung bình, độ dài chắn r_0 liên quan đến độ phân cực của đơn lớp TMDC ($r_0 = 2\pi\,\chi_{2D}$) và $\alpha = \dfrac{r_0}{\kappa a_0^*}$.

2.2. *Phương pháp đại số*

Phương trình (2) là phương trình Schrodinger cho dao động tử phi điều hoà. Phương trình đã giải bằng cách sử dụng các toán tử sinh huỷ được trình bày chi tiết trong (Feranchuk et al., 2015). Khi đó, để đưa các số hạng trong phương trình này về dạng đại số, các toán tử sinh huỷ $\hat{a},\ \hat{a}^+,\ \hat{b},\ \hat{b}^+$ là hàm của $u, v, \partial/\partial u, \partial/\partial v$ đã được định nghĩa chi tiết trong công trình 2023 (Ly et al., 2023). Những toán tử này thoả điều kiện

$$\left[\hat{a},\ \hat{a}^+\right]=1,\quad \left[\hat{b},\ \hat{b}^+\right]=1. \tag{4}$$

Tất cả những toán tử trong phương trình (2) có thể biểu diễn như sau:

$$\hat{T} = \frac{\partial^2}{\partial u^2}+\frac{\partial^2}{\partial v^2} = \omega\left(\hat{a}\hat{b}+\hat{a}^+\hat{b}^+-\hat{a}^+\hat{a}-\hat{b}^+\hat{b}-1\right), \tag{5}$$

$$\hat{R} = u^2+v^2 = \frac{1}{\omega}\left(\hat{a}\hat{b}+\hat{a}^+\hat{b}^++\hat{a}^+\hat{a}+\hat{b}^+\hat{b}+1\right), \tag{6}$$

Dạng đại số của bộ hàm cơ sở cho dao động tử điều hòa hai chiều được đưa ra dưới dạng:

$$|k,m\rangle = \frac{1}{\sqrt{(k+m)!(k-m)!}}(\hat{a}^+)^{k+m}(\hat{b}^+)^{k-m}|0\rangle, \tag{7}$$

với trạng thái cơ bản, chỉ số $m = 0$ và $0 \le k \le \infty$. Ở đây, trạng thái chân không $|0\rangle$ thỏa các phương trình

$$\hat{a}|0\rangle = 0,\qquad \hat{b}|0\rangle = 0. \tag{8}$$

Khi sử dụng mối liên hệ (4) và các các phương trình (8), ta có thể tính tất cả những yếu tố ma trận trong phương trình (3) và kết quả đã được đưa ra trong công trình 2023 (Ly et al., 2023). Hơn nữa, với bài toán cho trạng thái cơ bản ($m = 0$), các yếu tố ma trận có dạng:

$$T_{jk} = \frac{1}{\omega}\langle j,0|\hat{T}|k,0\rangle = -(2k+1)\delta_{jk} + k\delta_{j,k-1} + (k+1)\delta_{j,k+1}, \tag{9}$$

$$R_{jk} = \omega\langle j,0|\hat{R}|k,0\rangle = (2k+1)\delta_{jk} + k\delta_{j,k-1} + (k+1)\delta_{j,k+1}, \tag{10}$$

$$(V_K)_{jk} = \langle j,0|\omega\hat{V}_K|k,0\rangle = (2k+1)U_{jk} + kU_{j,k-1} + (k+1)U_{j,k+1}, \tag{11}$$

với

$$U_{jk} = -\frac{1}{\kappa\alpha}\sum_{s=0}^{\min(k,j)}\sum_{t=0}^{j+k-2s}(-1)^{j+k+t}\binom{j+k-2s}{t}\binom{j}{s}\binom{k}{s}\int_0^{+\infty}\frac{dq}{(1+q)^{2s+t+1}\sqrt{q^2+\dfrac{1}{\omega^2\alpha^2}}}, \tag{12}$$

và ω là tham số tự do được đưa vào trong định nghĩa các toán tử sinh hủy để điều chỉnh tốc độ hội tụ của bài toán, với tham số này, thành phần nhiễu loạn luôn được điều chỉnh nhỏ hơn thành phần chính.

2.3. *Lí thuyết nhiễu loạn Rayleigh-Schrödinger*

Lí thuyết nhiễu loạn giải phương trình *Schrödinger đã* được trình bày chi tiết trong nhiều sách giáo khoa Cơ học lượng tử. Tuy nhiên, trong các nghiên cứu của nhóm chúng tôi phương trình có một chút khác biệt với dạng $\hat{H}\psi(u,v) = E\,\hat{R}\psi(u,v)$ nên lí thuyết cần phát triển và đã được đưa ra trong (Nguyen et al., 2023). Ở phần này, chúng tôi khẳng định lại các biểu thức và sử dụng để tính toán năng lượng của exciton ở trạng thái cơ bản.

Phương trình (2) có thể viết lại như sau

$$\hat{H}\psi(u,v) = E\,\hat{R}\psi(u,v), \tag{13}$$

trong đó toán tử $\hat{H} = -\frac{1}{8}\hat{T} + \hat{V}_K$. Ở đây, các toán tử $\hat{T}$ và $\hat{R}$ được biểu diễn qua toán tử sinh huỷ trong các biểu thức (5) và (6). Toán tử $\hat{V}_K$ hoàn toàn có thể biểu diễn qua toán tử $\hat{R}$ như biểu thức (3). Để phát triển lí thuyết thì trước hết ta chia Hamiltonian $\hat{H}$ và toán tử $\hat{R}$ thành hai thành phần

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \beta\hat{V}, \qquad \hat{R} = \hat{R}_0 + \beta\hat{R}_V. \tag{14}$$

Ở đây, các thành phần $\hat{H}_0$ và $\hat{R}_0$ là những toán tử trung hoà, hai toán tử còn lại $\hat{V}$ và $\hat{R}_V$ có thể xem như thành phần nhiễu loạn, $\beta \ll 1$ là tham số nhiễu loạn. Hàm sóng và năng lượng sẽ được khai triển theo tham số này.

Các yếu tố ma trận của những toán tử này cũng được xác định như sau. Khi $j \neq k$ thì

$$\langle k,0|\hat{H}_0|j,0\rangle = 0,\ \langle k,0|\hat{R}_0|j,0\rangle = 0,\ \langle k,0|\hat{V}|j,0\rangle = v_{kj},\ \langle k,0|\hat{R}_V|j,0\rangle = r_{kj}. \tag{15}$$

Trường hợp $j = k$, chúng ta có

$$\langle k,0|\hat{H}_0|k,0\rangle = h_{kk},\ \langle k,0|\hat{R}_0|k,0\rangle = r_{kk},\ \langle k,0|\hat{V}|k,0\rangle = 0,\ \langle k,0|\hat{R}_V|k,0\rangle = 0. \tag{16}$$

Trong bài toán của chúng tôi, các yếu tố ma trận h_{kk}, r_{kk}, v_{kj}, r_{kj} có thể mô tả qua các biểu thức (9), (10) và (11). Cụ thể như sau:

$$h_{kk} = \langle k,0|\hat{H}_0|k,0\rangle = \langle k,0|\hat{H}|k,0\rangle = -\frac{\omega T_{kk}}{8} + \frac{(V_K)_{kk}}{\omega},$$

$$r_{kk} = \langle k,0|\hat{R}_0|k,0\rangle = \langle k,0|\hat{R}|k,0\rangle = \frac{R_{kj}}{\omega}.$$

Với $j \neq k$ thì

$$r_{kj} = \langle k,0|\hat{R}_V\,|\,j,0\rangle = \langle k,0|\hat{R}|\,j,0\rangle = \frac{R_{kj}}{\omega}$$

$$v_{kj} = \langle k,0|\hat{V}\,|\,j,0\rangle = \langle k,0|\hat{H}\,|\,j,0\rangle = -\frac{\omega T_{kj}}{8} + \frac{(V_K)_{kj}}{\omega}. \tag{17}$$

Để tính gần đúng bậc không của năng lượng và hàm sóng ($n = 0$), ta bỏ các thành phần có tham số $\beta = 0$ trong phương trình (14), khi đó $\left|\psi_{00}^{(0)}\right\rangle = |0,0\rangle$ và thay (9), (10) vào (17), ta được

$$E_{00}^{(0)} = \varepsilon_{00} = \frac{h_{00}}{r_{00}} = \frac{\omega^2}{8} + (V_K)_{00}. \tag{18}$$

Tiếp đến, gần đúng bậc một của hàm sóng và năng lượng có dạng như sau:

$$\left|\psi_{00}^{(1)}\right\rangle = |0,0\rangle + \beta\left|\Delta\psi_{00}^{(1)}\right\rangle, \qquad E_{00}^{(1)} = \varepsilon_{00} + \beta\,\Delta E_{00}^{(1)}. \tag{19}$$

Đem (19) và (14) thế vào phương trình (13) và đồng nhất theo β, chúng ta tính được

$$\Delta E_{00}^{(1)} = 0, \; \left|\Delta\psi_{00}^{(1)}\right\rangle = -\sum_{j=1}^{+\infty}\frac{v_{j0} - \varepsilon_{00}r_{j0}}{h_{jj} - \varepsilon_{00}r_{jj}}|\,j,0\rangle \tag{20}$$

Sau cùng, gần đúng bậc hai của hàm sóng và năng lượng có dạng

$$\left|\psi_{00}^{(2)}\right\rangle = |0,0\rangle + \beta\left|\Delta\psi_{00}^{(1)}\right\rangle + \beta^2\left|\Delta\psi_{00}^{(2)}\right\rangle, \qquad E_{00}^{(2)} = \varepsilon_{00} + \beta^2\,\Delta E_{00}^{(2)}. \tag{21}$$

Thay (21) và (14) vào phương trình (13) và đồng nhất theo β^2, ta cũng có được

$$\Delta E_{00}^{(2)} = -\sum_{j=1}^{+\infty}\frac{(h_{j0}r_{00} - h_{00}r_{j0})^2}{(h_{jj}r_{00} - h_{00}r_{jj})r_{00}{}^2}, \tag{22}$$

$$\left|\Delta\psi_{00}^{(2)}\right\rangle = -\sum_{j=1}^{+\infty}\sum_{k=1}^{+\infty}\frac{(v_{j0}r_{00} - h_{00}r_{jn})(v_{kj}r_{00} - h_{00}r_{kj})}{(h_{jj}r_{00} - h_{00}r_{jj})(h_{kk}r_{00} - h_{00}r_{kk})}|k,0\rangle. \tag{23}$$

3. *Kết quả và thảo luận*

3.1. *Năng lượng exciton trạng thái cơ bản*

Để tính năng lượng exciton trạng thái cơ bản của đơn lớp TMDC, ta thay (11) và (12) vào (18), khi đó

$$\varepsilon_{00} = \frac{1}{8x^2\alpha^2} - \frac{1}{\kappa\alpha}\left\{\frac{1}{x^2+1}\frac{\ln\left[\left(1+\sqrt{x^{-2}+1}\right)\left(1+\sqrt{x^2+1}\right)\right]}{\sqrt{x^2+1}} + \frac{x-1}{x^2+1}\right\}, \tag{24}$$

với $x = \dfrac{1}{\omega\alpha}$ (25)

Từ biểu thức (24), có thể xác định tham số tự do ω hay x (vì $x = 1/\omega\alpha$) bởi điều kiện $\partial\varepsilon_{1s}/\partial x = 0$. Với trường hợp WSe_2 ($\kappa = 4.34; r_0 = 4.21nm = 4.21\times10^{-9}m; \mu = 0.190m_e$), ta được $x = 0.8032$ và WS_2 ($\kappa = 4.16; r_0 = 3.76nm = 3.76\times10^{-9}m; \mu = 0.175m_e$) thì $x = 0.8631$. Thay các giá trị của x vào (24), được kết quả ở cột $E^{(0)}$ Bảng 1. Với cột $E^{(0)}$ trình bày năng lượng exciton khi chưa xét đến bổ chính, các giá trị sai số lần lượt là 2.15% và 2.16% cho WSe_2 và WS_2, khi so sánh với công trình 2023 (Ly et al., 2023).

Các biểu thức tính bổ chính bậc hai cho năng lượng $\Delta E_{00}^{(2)}$, chúng tôi trình bày ở phần phụ lục. Sau đó, ta thay các giá trị của x ở trên vào (P1), (P3 – P7) và (21), được kết quả là cột $E^{(2)}$ ở Bảng 1. Khi so sánh kết quả cột $E^{(2)}$ với công trình 2023 (Ly et al., 2023), các giá trị sai số lần lượt là 0.32% và 0.40% cho WSe_2 và WS_2. Ngoài ra, khi tính số chúng ta sẽ nhận thấy cần tính đến số hạng nào của bổ chính. Ở đây, có thể tính đến sáu số hạng trong bổ chính bậc hai vì sự đóng góp từ số hạng thứ bảy trở đi là rất nhỏ có thể bỏ qua. Như vậy khi tính đến bổ chính bậc hai, kết quả là khá tốt so với (Ly et al., 2023).

Bảng 1. *Năng lượng exciton cho trạng thái cơ bản.*

Chất	$E^{(0)}$ ***(meV)***	δ **(%)**	$E^{(2)}$ ***(meV)***	δ **(%)**	E ***(meV)*** **(Ly et al., 2023)**
WSe_2	–164.974	2.15	–168.064	0.32	–168.603
WS_2	–174.665	2.16	–177.901	0.40	–178.617

3.2. *Biểu thức giải tích cho năng lượng exciton trạng thái cơ bản*

Từ biểu thức (24) chúng tôi khai triển Taylor đến bậc bốn để tính gần đúng và xác định được biểu thức giải tích cho năng lượng khi chưa xét đến bổ chính:

$$\varepsilon_{00} \simeq \frac{1}{8(x\alpha)^2} - \frac{1}{\kappa\alpha}\left(1.85203 - 2.70121x + 2.36141x^2 - 1.09960x^3 + 0.21059x^4\right), \quad (26)$$

với điều kiện $\frac{\partial\varepsilon_{1s}}{\partial x} = 0$ và từ (26), chúng tôi xác định tham số x phụ thuộc vào κ và α như sau

$$x = 0.33337 + 0.38325\frac{\kappa}{\alpha}. \quad (27)$$

Tương tự, từ các biểu thức (P1), (P3 – P7), chúng tôi cũng tính được biểu thức giải tích cho các số hạng bổ chính bậc hai

$$\Delta E_1^{(2)} = -\frac{1}{\kappa\alpha}(0.02365 - 0.04096x + 0.03564x^2 - 0.01618x^3 + 0.00303x^4) \quad (28)$$

$$\Delta E_2^{(2)} = -\frac{1}{\kappa\alpha}\left(0.00310 - 0.00257x + 0.00095x^2 - 0.00011x^3 + 0.00002x^4\right) \quad (29)$$

$$\Delta E_3^{(2)} = -\frac{1}{\kappa\alpha}\left(0.00134 - 0.00486x + 0.00830x^2 - 0.00620x^3 + 0.00188x^4\right) \quad (30)$$

$$\Delta E_4^{(2)} = -\frac{1}{\kappa\alpha}\left(0.00014 + 0.00023x - 0.00031x^2 + 0.00015x^3 - 0.00003x^4\right) \quad (31)$$

$$\Delta E_5^{(2)} = -\frac{1}{\kappa\alpha}\left(0.0000446 + 0.0001245x - 0.0001313x^2 + 0.0000571x^3 - 0.0000099x^4\right) \quad (32)$$

$$\Delta E_6^{(2)} = -\frac{1}{\kappa\alpha}\left(0.0000175 + 0.0000625x - 0.0000551x^2 + 0.0000212x^3 - 0.0000034x^4\right) \quad (33)$$

Cộng các số hạng ở (26), và (28 – 33), ta được biểu thức giải tích gần đúng bậc hai cho năng lượng của exciton trạng thái cơ bản như sau:

$$E_{00}^{(2)} = \frac{1}{8(x\alpha)^2} - \frac{1}{\kappa\alpha}\left(1.88032 - 2.74918x + 2.40580x^2 - 1.12186x^3 + 0.21548x^4\right), \quad (34)$$

thay x từ biểu thức (27) vào (34) ta được

$$E_{00}^{(2)} = \frac{1}{8(0.33337\alpha + 0.38325\kappa)^2} - \frac{1}{\kappa\alpha}\left[1.19229 - 0.56999\frac{\kappa}{\alpha} + 0.20967\left(\frac{\kappa}{\alpha}\right)^2 - 0.04698\left(\frac{\kappa}{\alpha}\right)^3 + 0.00465\left(\frac{\kappa}{\alpha}\right)^4\right] \quad (35)$$

Kết quả cho hai trường hợp WSe_2 và WS_2 được trình bày trong Bảng 2. Với cột $E^{(0)}$ trình bày năng lượng exciton khi chưa xét đến bổ chính (biểu thức số (26)), các giá trị sai số lần lượt là 2.17% và 2.22% cho WSe_2 và WS_2, khi so sánh với công trình 2023 (Ly et al., 2023). Cột $E^{(2)}$ trình bày kết quả khi xét đến bổ chính bậc hai, các tham số của WSe_2 ($\kappa = 4,34; \alpha = 3,483$) và WS_2 ($\kappa = 4.16; \alpha = 2.989$) được thay vào biểu thức (35), với sai số là 0.38% và 0.44% lần lượt cho WSe_2 và WS_2. Từ kết quả khá tốt cho hai trường hợp WSe_2 và WS_2, chúng ta có thể áp dụng biểu thức tổng quát (35) cho những đơn lớp TMDC khác nhau.

Bảng 2. *Năng lượng exciton cho trạng thái cơ bản tính từ biểu thức giải tích (26) và (35).*

Chất	$E^{(0)}$ ***(meV)***	δ **(%)**	$E^{(2)}$ ***(meV)***	δ **(%)**	E ***(meV)*** **(Ly et al., 2023)**
WSe_2	–164.938	2.17	–167.955	0.38	–168.603
WS_2	–174.650	2.22	–177.838	0.44	–178.617

4. Kết luận

Phương pháp lí thuyết nhiễu loạn có điều tiết được phát triển một cách thành công để xây dựng biểu thức giải tích cho năng lượng exciton trong đơn lớp TMDC ở trạng thái cơ bản. Kết quả đạt được sai số dưới 0.5% so với kết quả chính xác bằng số công bố trước đây. Kết quả này được tính tổng quát cho tất cả các loại đơn lớp TMDC và kiểm chứng số cho đơn lớp WS_2 và WSe_2. Trong công trình tiếp theo, chúng tôi sẽ tìm biểu thức giải tích cho các trạng thái 2s, 3s, 4s, 5s và xây dựng biểu thức tổng quát cho trạng thái s đồng thời kiểm chứng số cho nhiều loại TMDC khác nhau.

- ***Tuyên bố về quyền lợi:*** *Các tác giả xác nhận hoàn toàn không có xung đột về quyền lợi.*
- ***Lời cảm ơn:*** *Cảm ơn GS TSKH Lê Văn Hoàng đã đặt ra bài toán, thảo luận, đóng góp trong quá trình tiến hành nghiên cứu và viết bài báo. Cảm ơn TS Phan Ngọc Hưng, cảm ơn sự tài trợ kinh phí từ Đề tài cấp Bộ, mã số B2022-SPS-09-VL.*

TÀI LIỆU THAM KHẢO

Berkelbach, T. C., Hybertsen, M. S., & Reichman, D. R. (2013). Theory of neutral and charged excitons in monolayer transition metal dichalcogenides. *Physical Review B, 88*, Article 045318. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.88.045318

Chernikov, A., Berkelbach T. C., Hill H. M., Rigosi A., Li Y., Aslan O. B., Reichman D. R., Hybertsen M. S., & Heinz T. F. (2014). Exciton biding energy and nonhydrogenic Rydberg series in monolayer WS_2. *Physical Review Letters, 113*, Article 076802. https://doi.org/10.48550/arXiv.1403.4270

Feranchuk, I., Ivanov, A., Le, V. H., & Ulyanenkov, A. (2015). *Non-perturbative Description of Quantum Systems* (Vol. 894). Springer International Publishing.

Henriques, J. C. G., Kamban H. C., Pedersen T. G., & Peres N. M. R. (2021). Calculation of the nonlinear response functions of intraexciton transitions in two-dimensional transition metal dichalcogenides. *Physical Review B, 103*, Article 235412. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.235412

Hoang, D. N. T., Pham, D. L., and Le, V. H. (2013). Exact numerical solutions of the Schrödinger equation for a two-dimensional exciton in a constant magnetic field of arbitrary strength. *Physica B: Condensed Matter*, *423*, 31-37. http://dx.doi.org/10.1016/j.physb.2013.04.040

Keldysh, L. V. (1979). Coulomb interaction in thin semiconductor and semimetal films. *JETP Letters, 29*(11), 658-660.

Lin, Y., Chan Y.-h., Lee W., Lu L.-S., Li Z., Chang W.-H., Shih C.-K., Kaindl R. A., Louie S. G., & Lanzara A. (2022). Exciton-driven renormalization of quasiparticle band structure in monolayer MoS2. *Physical Review B, 106*, Article L081117. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.106.L081117

Liu, E., van Baren, J., Taniguchi, T., Watanabe, K., Chang, Y.-C., & Lui, C. H. (2019). Magnetophotoluminescence of exciton Rydberg states in monolayer WSe2. *Physical Review B, 99*(20), Article 205420. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.99.205420

Ly, D. N., Le, D. N., Nguyen, D. A. P., Hoang, D. N. T., Phan, N. H., Nguyen, L. H. M., & Le, V. H. (2023). Retrieval of material properties of monolayer transition metal dichalcogenides from magnetoexciton energy spectra. *Physical Review B, 107*, Article 205304.

Molas, M. R., A. O. Slobodeniuk, K. Nogajewski, M. Bartos, L. Bala, A. Babinski, K. Watanabe, T. Taniguchi, C. Faugeras, and M. Potemski. (2019). Energy spectrum of two-dimensional excitons in a nonuniform dielectric medium. *Physical Review Letters*, *123*, Article 36801. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.136801

Nguyen, D. A. P., Ly D. N., Le D. N., Hoang N. T. D., & Le V. H. (2019). High-accuracy energy spectra of a two-dimensional exciton screened by reduced dimensionality with the presence of a constant magnetic field. *Physica E, 113*, 152-164.

Nguyen, N. Q., Doan P. T., Phan, N. H., Ly, D. N., & Le V. H. (2023). Energies and diamagnetic constants of exciton in monolayer WSe_2. *Ho Chi Minh City University of Education Journal of Science.* (Accepted).

Nguyen-Truong T. H. (2022). Exciton binding energy and screening length in two-dimensional semiconductors. *Physical Review B, 105,* Article L201407. https://doi.org/10.1103/PhysRevB.105.L201407

Stier, A. V., Wilson, N. P., Velizhanin, K. A., Kono, J., Xu, X., & Crooker, S. A. (2018). Magnetooptics of exciton Rydberg states in a monolayer semiconductor. *Physical Review Letters*, *120,* Article 057405. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.057405

Zhu, B., Chen, X., and Cui, X. (2015). Exciton biding energy of monolayer WS_2. *Scientific reports* 5, *218*(2015), Article 9218. https://doi.org/10.1038/srep09218

ENERGY SPECTRA OF EXCITON FOR GROUND-STATE IN MONOLAYER TRANSITION-METAL DICHALCOGENIDES

Nguyen Ngoc Huy, Phan Ngoc Hung, Dinh Thi Hanh*

Ho Chi Minh City University of Education, Vietnam

**Corresponding author: Đinh Thị Hạnh – Email: hanhdt@hcmue.edu.vn*

Received: December 11, 2023; Revised: January 16, 2024; Accepted: January 18, 2024

ABSTRACT

Using the Modulated Perturbation Method (MPM) in the second approximation order to solve the Schrodinger equation, we get the analytical description for excitons for the ground state in monolayer transition metal dichalcogenide (TMDC). The results obtained are generalizable to many different types of TMDC. The accuracy test for two types of TMDC is WSe_2 and WS_2 by comparison with the exact numerical solutions shows that the error of the analytical description is less than 0.5%. This is a significant result and promising for further research for higher excited states.

Keywords: exciton; FK operator method; modulated perturbation method; TMDC

PHỤ LỤC

Khi thay các biểu thức *(9), (10), (11), (12) và (21) vào* (22), chúng ta xác định được các biểu thức bổ chính bậc hai cho năng lượng như sau:

$$\Delta E_1^{(2)} = \frac{\left[\frac{3x^2(-3+2x^2)}{2(x^2+1)^3} J_1(x) + \frac{(-1+4x+12x^2-11x^3-2x^4)}{2(x^2+1)^3}\right]^2}{\alpha\kappa\left[-\frac{15x^2(20-23x^2+20x^4)}{4(x^2+1)^5} J_1(x) + \frac{-30+112x+415x^2-484x^3-324x^4+255x^5+192x^6-110x^7+16x^8-16x^9}{4(x^2+1)^5}\right]}$$

(P1)

với $$J_1(x) = \frac{\ln\left[\left(1+\sqrt{x^{-2}+1}\right)\left(1+\sqrt{x^2+1}\right)\right]}{\sqrt{x^2+1}} \qquad \text{(P2)}$$

$$\Delta E_2^{(2)} = \frac{\left[\frac{(-3x^2+24x^4-8x^6)}{2(x^2+1)^4} J_1(x) + \frac{(1+28x^2-55x^3-72x^4+50x^5+6x^6)}{6(x^2+1)^4}\right]^2}{\alpha\kappa\left[\begin{array}{l} -\frac{105x^2(8-31x^2+65x^4-31x^6+8x^8)}{4(x^2+1)^7} J_1(x) + \frac{(-154+720x+4361x^2-7288x^3-13839x^4)}{12(x^2+1)^7} \\ +\frac{(17243x^5+19763x^6-16359x^7-5776x^8+2849x^9+1224x^{10}-658x^{11}+72x^{12}-72x^{13})}{12(x^2+1)^7} \end{array}\right]} \qquad \text{(P3)}$$

$$\Delta E_3^{(2)} = \frac{\left[\frac{5x^4(15-40x^2+8x^4)}{8(x^2+1)^5} J_1(x) - \frac{(2+x^2+64x^3+440x^4-607x^5-480x^6+274x^7+24x^8)}{24(x^2+1)^5}\right]^2}{\alpha\kappa\left[\begin{array}{l} -\frac{45x^2(640-5232x^2+21360x^4-30621x^6+21360x^8-5232x^{10}+640x^{12})}{64(x^2+1)^9} J_1(x) \\ +\frac{(-1200+6656x+57720x^2-123264x^3-403818x^4+647504x^5+1222599x^6)}{64(x^2+1)^9} \\ +\frac{(-1401904x^7-1337392x^8+1158087x^9+690512x^{10}-446826x^{11})}{64(x^2+1)^9} \\ +\frac{(-104832x^{12}+39288x^{13}+11264x^{14}-5805x^{15}+512x^{16}-512x^{17})}{64(x^2+1)^9} \end{array}\right]} \qquad \text{(P4)}$$

$$\Delta E_4^{(2)} = \frac{\frac{1}{\kappa\alpha}\left[\frac{3x^4(5-90x^2+120x^4-16x^6)}{8(x^2+1)^6} J_1(x) + \frac{2+9x^2-218x^4+693x^5+2000x^6-2184x^7-1200x^8+588x^9+40x^{10}}{40(x^2+1)^6}\right]^2}{\left[\begin{array}{l} -\frac{33x^2(1600-22480x^2+153440x^4-434595x^6+627529x^8-434595x^{10}+153440x^{12}-22480x^{14}+1600x^{16})}{64(x^2+1)^{11}} J_1(x) \\ +\frac{(-24112+153600x+1764136x^2-4532800x^3-21601162x^4+41659984x^5+115341985x^6-165527872x^7)}{960(x^2+1)^{11}} \\ +\frac{(-264726715x^8+298869139x^9+303304339x^{10}-269161915x^{11}-162359872x^{12}+112173985x^{13}+43243984x^{14})}{960(x^2+1)^{11}} \\ +\frac{(-23185162x^{15}-4004800x^{16}+1236136x^{17}+259200x^{18}+129712x^{19}+9600x^{20}-9600x^{21})}{960(x^2+1)^{11}} \end{array}\right]}$$

(P5)

$$\Delta E_5^{(2)}=\frac{\dfrac{1}{\kappa\alpha}\left[\begin{array}{l}\dfrac{7x^6(-35+210x^2-168x^4+16x^6)}{16(x^2+1)^7}J_1(x)-\dfrac{(8+50x^2+201x^4-768x^5-7966x^6)}{240(x^2+1)^7}\\-\dfrac{(15525x^7+26600x^8-24396x^9-10080x^{10}+4356x^{11}+240x^{12})}{240(x^2+1)^7}\end{array}\right]^2}{\left[\begin{array}{l}-\dfrac{273x^2(1280-27520x^2+284160x^4-1327140x^6+3301308x^8-4418009x^{10})}{256(x^2+1)^{13}}J_1(x)\\-\dfrac{273x^2(3301308x^{12}-1327140x^{14}+284160x^{16}-27520x^{18}+1280x^{20})}{256(x^2+1)^{13}}J_1(x)\\+\dfrac{(-122304+875520x+12658464x^2-37730560x^3-239499624x^4+535077248x^5+2001623364x^6)}{3840(x^2+1)^{13}}\\+\dfrac{(-3402425088x^7-7814503554x^8+10651446308x^9+16102841313x^{10}-17805652948x^{11}-17726579668x^{12})}{3840(x^2+1)^{13}}\\+\dfrac{(16023768033x^{13}+10710751268x^{14}-7873808514x^{15}-3369477888x^{16}+1968676164x^{17}+548256128x^{18})}{3840(x^2+1)^{13}}\\+\dfrac{(-152678504x^{19}-34136320x^{20}+9064224x^{21}+1474560x^{22}-721344x^{23}+46080x^{24}-46080x^{25})}{3840(x^2+1)^{13}}\end{array}\right]}$$

(P6)

$$\Delta E_6^{(2)}=\frac{\dfrac{1}{\kappa\alpha}\left[\begin{array}{l}-\dfrac{x^6(35-1120x^2+3360x^4-1792x^6+128x^6)}{16(x^2+1)^8}J_1(x)\\+\dfrac{(40+302x^2+1051x^4+14656x^6-45477x^7-205408x^8+305934x^9)}{1680(x^2+1)^8}\\+\dfrac{(360640x^{10}-287736x^{11}-94080x^{12}+36528x^{13}+1680x^{14})}{1680(x^2+1)^8}\end{array}\right]^2}{\left[\begin{array}{l}-\dfrac{15x^2(35840-1094016x^2+15953280x^4-110849620x^6+423965808x^8-926722293x^{10}+1201846791x^{12})}{256(x^2+1)^{15}}J_1(x)\\-\dfrac{15x^2(-926722293x^{14}+423965808x^{16}-110849620x^{18}+15953280x^{20}-1094016x^{22}+35840x^{24})}{256(x^2+1)^{15}}J_1(x)\\-\dfrac{(-69696+551936x+9694624x^2-32714752x^3-261999512x^4+661702272x^5+3165011076x^6)}{1792(x^2+1)^{15}}\\+\dfrac{(-6165039488x^7-18753600922x^8+29631882892x^9+61036399361x^{10}-79669723928x^{11}-113405050339x^{12})}{1792(x^2+1)^{15}}\\+\dfrac{(123824750211x^{13}+123986191491x^{14}-113566491619x^{15}-79544158488x^{16}+60910833921x^{17})}{1792(x^2+1)^{15}}\\+\dfrac{(+29707222156x^{18}-18828940186x^{19}-6130794368x^{20}+3130765956x^{21}+673117312x^{22}-273414552x^{23})}{1792(x^2+1)^{15}}\\+\dfrac{(-30080512x^{24}+7060384x^{25}+928256x^{26}-446016x^{27}+25088x^{28}-25088x^{29})}{1792(x^2+1)^{15}}\end{array}\right]}.$$

(P7)