

# Время жизни оптических фононов и форма рамановского пика в слабонеупорядоченных нанокристаллах

О.И. Утесов, А.Г. Яшенкин (кафедра ЯФМИ), С.В. Коняхин

PACS numbers: теория конденсированного состояния, оптика, физическая химия

В кристаллических наночастицах рамановский пик в рассеянии света асимметричен и сдвинут в красную сторону спектра. Оба этих эффекта напрямую связаны с конечным размером частиц и могут использоваться для определения их размеров и формы. Комбинирование метода динамической матрицы (ДММ) и модели поляризации связей (ВРМ) в рамках единого подхода позволяет микроскопически описать рамановские спектры нанопорошков неполярных кристаллов [1]. Данная теория пригодна для изучения частиц размером до 5-6 нанометров и фитирует недавние эксперименты в порошках нанодIAMAZOV гораздо лучше, чем используемая в настоящий момент феноменологическая модель фононного конфинмента (РСМ).

Другой предложенный метод [2], позволяющий описывать в том числе и наночастицы гораздо больших размеров, состоит в замене дискретной задачи о собственных частотах и волновых функциях оптических фононов, сформулированной в рамках ДММ, решением её длинноволнового аналога — уравнения Клейна-Фока-Гордона в евклидовом пространстве (ЕКФГ) с граничными условиями Дирихле. Вместе с непрерывной формулировкой ВРМ этот подход позволяет вычислять рамановские спектры нанопорошков с точностью, не уступающей точности вышеупомянутого атомистического подхода. Анализ экспериментальных данных в рамках обоих методов позволяет извлекать из эксперимента такие важные параметры нанопорошка, как средний размер наночастицы  $L$ , дисперсия функции распределения частиц по размерам  $\delta L$ , а также форма кристаллитов, параметризованная числом граней  $p$ . При этом все величины выражаются через физико-химические характеристики материала, и единственным подгоночным параметром теории является ширина линий фононного спектра  $\Gamma$ .

Последний недостаток был устранен в результате построения микроскопической теории уширения фононных линий за счет внутреннего беспорядка в нанокристалле [3-4]. Это позволило объяснить экспериментально наблюдаемое значительное увеличение ширины рамановского пика в нанопорошках по сравнению с массивными образцами и эмпирическую  $1/L$ -зависимость ширины пика от размера наночастиц, а также существенно улучшить качество фитирования. В результате параметры  $L$  и  $\delta L$  (а также параметр  $S$ , характеризующий беспорядок в частице) могут извлекаться из эксперимента с точностью до двух значащих цифр. Значение  $p$  в настоящий момент может

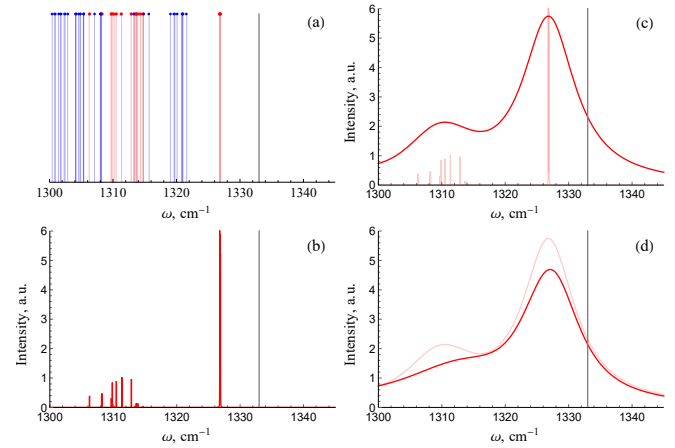


Рис. 1: Четыре этапа при вычислении рамановского пика: (a) нахождение фононных частот и волновых функций наночастиц; (b) выделение рамановски активной части фононного спектра; (c) учет затухания фононных мод; (d) учет разброса частиц в порошке по размерам.

быть только оценено, но метод содержит резервы по повышению точности.

Таким образом, предлагаемый метод становится пригодным для аттестации нанокристаллических порошков как в научных, так и в инженерно-практических целях. Он надежен, относительно недорог и точен, не разрушает объект исследования.

Необходимо отметить, что теория оптических фононов в слабонеупорядоченных наночастицах [3,4] сама по себе пригодна для описания не только наночастиц неполярных кристаллов, но и для полярных кристаллов, металлов, квантовых точек и коротких квантовых проволок.

- [1] S. V. Koniakhin, O. I. Utesov, I. N. Terterov, A. V. Siklitskaya, A. G. Yashenkin, and D. Solnyshkov, *J. Phys. Chem. C* **122**, 19219 (2018).
- [2] O. I. Utesov, A. G. Yashenkin, and S. V. Koniakhin, *J. Phys. Chem. C* **122**, 22738 (2018).
- [3] O. I. Utesov, A. G. Yashenkin, and S. V. Koniakhin, *Phys. Rev. B* **102**, 205421 (2020).
- [4] S. V. Koniakhin, O. I. Utesov, and A. G. Yashenkin, *Phys. Rev. B* **102**, 205422 (2020).
- [5] A. G. Yashenkin, O. I. Utesov, and S. V. Koniakhin, arXiv:1806.08100; направлено в печать.