



TU Chemnitz

FGLA

Deutsche
Forschungsgemeinschaft

DFG

TP 2



FSU Jena

Theoretische Untersuchungen der spektroskopischen Eigenschaften von Silizium-Nanoteilchen

*Reinhard Scholz, Technische Universität München
Michael Schreiber, Technische Universität Chemnitz*

Mit DFT und TD-DFT wurden die Geometrien von H-passivierten Si-Kristallen bis zu einem Durchmesser von 1.5 nm im elektronischen Grundzustand und im symmetriegebrochenen angeregten Zustand optimiert. Für alle untersuchten Modellcluster wurde der Einfluss der tetragonalen und tetraedrischen Deformation auf die Stokes-Verschiebung einzeln bestimmt, so dass ein quantitativer Vergleich des Jahn-Teller-Effekts mit symmetrieerhaltenden Verformungen möglich war. In einigen der untersuchten Fälle war der Einfluss der Symmetrierniedrigung auf die Rotverschiebung dominant.

Der nächste Schritt unserer Untersuchungen wird die Projektion der Deformationen auf die Vibrationseigenvektoren im elektronischen Grundzustands sein, so dass die vibronischen Progressionen in den PL-Spektren erstmals berechnet werden können. Von einem methodischen Standpunkt betrachtet ist die einzige benötigte Information der Huang-Rhys-Faktor jeder Vibrationsmode. Der einzige Unterschied zu einer quantitativen Analyse der vibronischen Banden in der Absorption ist die für die Projektion verwendete Potentialfläche: Absorption muss auf der angeregten Potentialfläche analysiert werden, PL auf der Fläche des elektronischen Grundzustands.

Für Benzofluoren wurde die Deformation in den relaxierten Geometrien der zwei niedrigsten angeregten Zustände ermittelt. Die Verteilung der stark ausgelenkten Moden im elektronischen Grundzustand auf verschiedene Frequenzbereiche entspricht im wesentlichen den in TP 11 beobachteten Absorptionslinien. Der nächste Schritt wird eine Berechnung der Vibrationsmoden im elektronisch angeregten Zustand sein, so dass die Dushinsky-Rotationen quantifiziert werden können. Darüber hinaus erwarten wir von einer Projektion der Verformung auf die Vibrationsmoden im elektronisch angeregten Zustand eine bessere Übereinstimmung mit den experimentell ermittelten Modenintensitäten.