

01;02;04;12

## Образование фуллеренов в плазме газового разряда.

### I. Кинетика образования фуллеренов из полициклических структур

© Н.И. Алексеев, Г.А. Дюжев

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 3 сентября 1998 г.)

Предложена модель образования фуллеренов из трехкольцевых структур. Показано, что в условиях дугового разряда фуллерены более эффективно образуются при захвате растущим кластером из окружающего пространства молекул  $C_2$ . Выписана система уравнений для расчета при этих предположениях кинетики образования фуллереновых структур и проведены расчеты.

При анализе процесса синтеза фуллеренов большинство исследователей рассматривают дугу лишь как эффективный источник углеродного пара. При этом различия в свойствах заряженных и незаряженных кластеров, предшествующих образованию фуллерена, а также реакции, специфические для дуговой плазмы, остаются за рамками рассмотрения. Целью настоящего цикла работ является попытка восполнить этот пробел. И естественно, что начинать надо с рассмотрения кинетики образования фуллеренов.

Наиболее обоснованной схемой образования фуллеренов является эволюция углерода по пути атомы  $\rightarrow$  молекулы  $\rightarrow$  цепочки  $\rightarrow$  двух- и трехкольцевые системы  $\rightarrow$  фуллерены. Этот путь базируется на результатах изучения подвижности и отжига углеродных кластеров, которые образуются при лазерном испарении графита [1]. Наименее понятным и наиболее сложным для моделирования в этой схеме эволюции углерода является последний переход от трехкольцевых систем к фуллерену.

Модель такого перехода предложена в [2], где рассматривается эволюция трехкольцевого кластера (рис. 1, *a*, *b*) в результате последовательности внутренних преобразований. Авторы [2] предполагали, что кластер развивается так, что в уже собранном участке поверхности существует не более одного атома с ненасыщенной валентностью (радикала). Одновременно, основываясь на модельных квантово-химических расчетах, авторы считали, что увеличение энергии связи кластера при образовании смежных пентагонов невелико. При таких предположениях эволюция кластера начинается с образования компактного скопления из шести пентагонов. В процессе эволюции формируется вытянутый кластер, который замыкается аналогичным скоплением пентагонов.

Предложенную в [2] схему трудно непосредственно использовать для анализа образования фуллеренов в дуговом разряде по двум причинам.

1. Время первой реакции, необходимой для запуска изомеризации, для структуры с центральным гексагоном (рис. 1, *b*) имеет порядок  $10^{-2}$  с. За такое время газодинамическая струя вынесет трехкольцевой кластер в зону низких температур и его изомеризация станет невозможной.

2. Конечную структуру эволюции кластера в [2] весьма трудно превратить в фуллерен с помощью преобразования Стоуна–Уэлса. Из любой четверки смежных многоугольников такой структуры образуется по крайней мере один четырех- или семиугольник, и для возвращения к структуре из пентагонов и гексагонов необходимы новые преобразования, связанные с большими затратами энергии. На периферии дуги в области низких температур произвести такие затраты энергии трудно.

Мы считаем, что в дуговом разряде фуллерены более эффективно образуются в условиях, когда растущий кластер захватывает из окружающего пространства молекулы  $C_2$  и, возможно,  $C_3$ . Сделанное предположение создает два преимущества. Во-первых, захват молекулы  $C_2$  центральной областью исходной трехкольцевой системы дает эффективный толчок дальнейшим реакциям. Во-вторых, захват хотя бы одной молекулы на начальном этапе сборки обеспечивает более равномерное заполнение поверхности пентагонами и гексагонами. Это сильно упрощает отжиг сформированной затем поверхности в фуллерен.

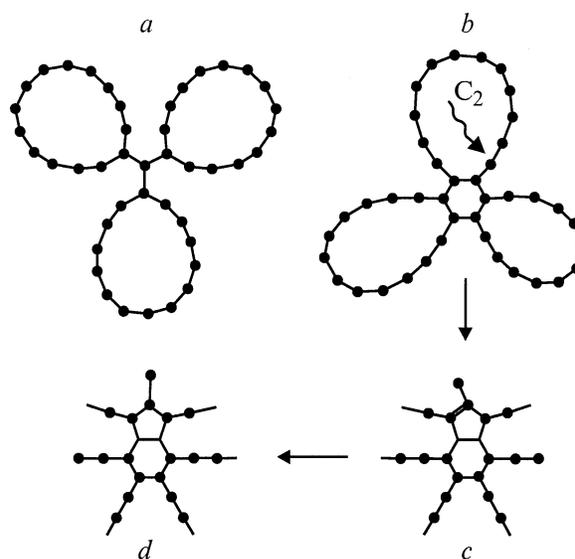
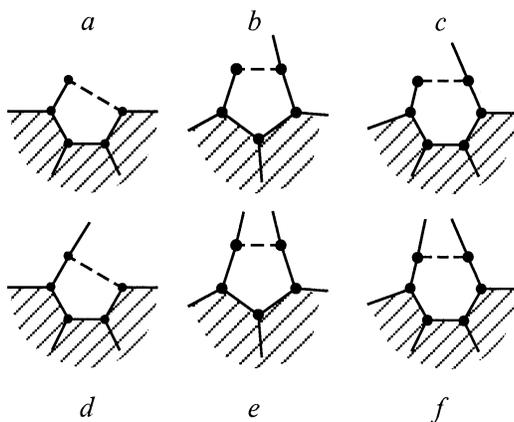


Рис. 1. Исходные трехкольцевые кластеры в [2] (*a*, *b*) и реакция захвата молекулы  $C_2$  ядром структуры (*c*, *d*).



**Рис. 2.** Реакции гибели торчащих атомов и образования радикалов (*a, b, c*), гибели (*d*) и реакции без участия радикалов и торчащих атомов (*e, f*).

Однако "открытость" системы в процессе роста приводит к тому, что ее описание должно быть статистическим, так как в каждый момент времени существуют кластеры с разным числом многоугольников и разной топологией. Естественно, что это усложняет расчеты.

Как и в [2], в качестве исходного мы брали трехкольцевой кластер, представленный на рис. 1, *b*. Хотя предлагаемую схему можно применить и к двухкольцевым структурам, в трехкольцевом варианте обеспечивается гораздо более быстрая трансформация кластера, требующая к тому же значительно меньшего числа присоединений молекул  $C_2$ .

Наиболее эффективной реакцией на первом шаге "строительства" фуллерена мы считали соединение молекулы  $C_2$  с ближайшим к гексагону атомом одного из колец. Сечение реакции составляет примерно  $5\sigma_0$ , где  $\sigma_0 = 5.2 \cdot 10^{-16} \exp(-0.5/T) \text{ cm}^2$  отвечает соединению двух атомов углерода в молекулу  $C_2$  [3], а характерное время  $\tau_0 = (5\sigma_0 v_T n_2)^{-1} \sim 10^{-4} \text{ s}$  при температуре  $T = 0.3 \text{ eV}$  и концентрации молекул  $n_2 = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ . Такой порядок концентрации, по нашим оценкам, вполне типичен для области генерации трехкольцевых систем в дуге.

Наиболее вероятным результатом присоединения молекулы является образование связи между первым атомом молекулы  $C_2$  и первым атомом цепочки, чему соответствует двойная линия на рис. 1, *c* (для экономии места на рисунке цепочки показаны отрезками лучей), т.е. образование пентагона и "торчащего" атома углерода. Это связано с тем, что радикала при такой реакции не образуется, а реактивность цепочки из двух атомов очень велика.

Следует отметить, что по мере увеличения поверхности строящегося кластера скорости реакций быстро растут, а торчащие атомы исчезают (рис. 2, *a-c*; область, занятая поверхностью к началу реакции, заштрихована). На их месте возникают радикалы, число которых также постепенно уменьшается до нуля (рис. 2, *d*).

В дальнейшем будем называть спонтанными реакции между атомами углерода, уже имеющимися в системе, а индуцированными — реакции, вызванные молекулами  $C_2$ . Характерные времена спонтанных реакций на начальной стадии изомеризации (кроме первой, "медленной" реакции) можно оценить на основе [2]. Они составляют примерно  $\tau_1 \approx 2-3 \cdot 10^{-5} \text{ s}$ . Очевидно, что время образования нового многоугольника с участием атома углерода присоединенной молекулы  $C_2$  много меньше величины  $\tau_1$ .

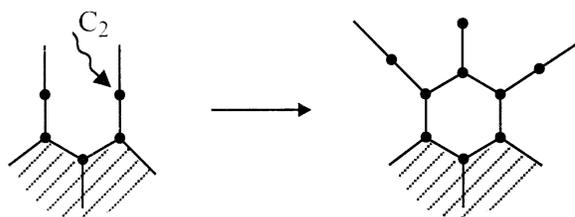
Для оценки роли индуцированных реакций надо сравнить гипотетическое время, за которое в [2] без участия молекул  $C_2$  формируется центральное ядро пентагонов ( $\approx 5\tau_1$ ), со временем  $\tau_0$ .

При концентрации  $n_2 = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  в нашей модели ядро кластера успевает захватить 1–2 молекулы  $C_2$  (не считая первого столкновения, дающего толчок изомеризации). При этом цепочки дальнейших реакций приводят к тому, что в области максимального скопления число пентагонов не превышает трех.

Трансформация трехкольцевого кластера в фуллерен описывалась системой уравнений баланса для концентрации  $Y$  кластеров с числом пентагонов  $N_5$ , гексагонов  $N_6$ , числом атомов  $N$ , торчащих атомов  $\mu$  и вакантных радикалов  $\rho$ . Полагалось, что если собранный участок поверхности достаточно велик, то все возможные положения радикалов занимают концы цепочек с равной вероятностью. На начальном этапе сборки возможные реакции и конфигурации перебирались "вручную".

Уравнения включали индуцированные реакции, прямые и обратные спонтанные реакции рождения и гибели многоугольников и реакции "встраивания" молекул  $C_2$  в цепочки. Сечения таких реакций рассчитаны в [2] и для типичных размеров колец дают характерное время примерно втрое меньше  $\tau_0$ , так что за время изомеризации к кластеру успевает присоединиться всего 7–9 молекул  $C_2$ . Наконец, если число атомов нечетно, предусмотрена возможность отрыва атома на заключительном этапе изомеризации и замыкания кластера в фуллерен с четным числом атомов.

На рис. 2 показаны шесть учтенных спонтанных реакций. Реакции, индуцированные присоединением молекулы  $C_2$  с последующим образованием пентагона или гексагона и торчащего атома, показаны на рис. 1 (переход от рис. 1, *b* к рис. 1, *c*) и 3.



**Рис. 3.** Индуцированная реакция с рождением гексагона.

Система выглядела следующим образом:

$$\begin{aligned}
 dY_{N_5, N_6, \mu, \rho} / dt = & (W_{\Delta N_5 = +1} Y)_{N_5 - 1, N_6} - (W_{\Delta N_5 = +1} Y)_{N_5, N_6} \\
 & + (W_{\Delta N_6 = +1} Y)_{N_5, N_6 - 1} - (W_{\Delta N_6 = +1} Y)_{N_5, N_6} \\
 & + (W_{\Delta N_5 = -1} Y)_{N_5 + 1, N_6} - (W_{\Delta N_5 = -1} Y)_{N_5, N_6} \\
 & + (W_{\Delta N_6 = -1} Y)_{N_5, N_6 + 1} - (W_{\Delta N_6 = -1} Y)_{N_5, N_6} \\
 & + n_2 v_T \exp(-0.5/T) [(\sigma_{\Delta N_5 = 1, \Delta \mu = +1} Y)_{N_5 - 1, N_6, \mu - 1, \rho} \\
 & - (\sigma_{\Delta N_5 = 1, \Delta \mu = +1} Y)_{N_5, N_6, \mu, \rho} \\
 & + (\sigma_{\Delta N_6 = 1, \Delta \mu = +1} Y)_{N_5, N_6 - 1, \mu - 1, \rho} \\
 & - (\sigma_{\Delta N_6 = 1, \Delta \mu = +1} Y)_{N_5, N_6, \mu, \rho}] \\
 & + 3n_2 v_T [\sigma_{2, (N - 2 - N_5) / 3} Y_{N_5, N_6, N - 2} \\
 & - \sigma_{2, (N - N_6) / 3} Y_{N_5, N_6, N}]. \quad (1)
 \end{aligned}$$

Нижний значок у вероятностей  $W$  спонтанных реакций указывает на изменение числа пентагонов и гексагонов. В действительности каждое слагаемое типа  $WY$  есть сумма по всем реакциям данного типа, в ходе которого различным образом меняются числа  $\mu$  и  $\rho$ . Например,

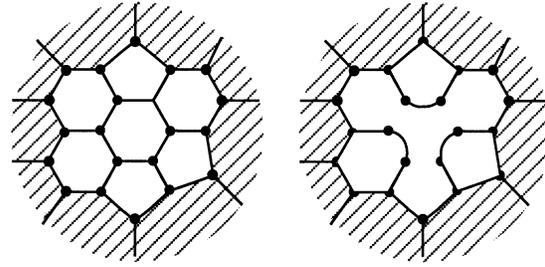
$$\begin{aligned}
 W_{\Delta N_6 = +1} Y_{N_5, N_6} \equiv & W_{\Delta N_6 = +1, \Delta \mu = 0, \Delta \rho = 0} Y_{N_5, N_6, \mu, \rho} \\
 & + W_{\Delta N_6 = +1, \Delta \mu = -1, \Delta \rho = +1} Y_{N_5, N_6, \mu, \rho}. \quad (2)
 \end{aligned}$$

Здесь первое слагаемое отвечает реакции, приведенной на рис. 2, *f*, второе — на рис. 2, *c*. В системе уравнений (1)  $\sigma_{\Delta N_5 = 1, \Delta \mu = +1}$  и  $\sigma_{\Delta N_6 = 1, \Delta \mu = +1}$  — сечения реакций образования пентагона или гексагона и торчащего атома при захвате молекулы  $C_2$ ;  $\sigma_{2, k}$  в последнем слагаемом в (1) — сечение захвата молекулы  $C_2$  кольцом из  $k$  атомов.

Полагалось, что вероятности спонтанных реакций  $W$  можно представить как произведение трех множителей: первый характеризует этап сборки, на котором находится система; второй, комбинаторный, характеризует геометрическую вероятность таких конфигураций активных элементов поверхности, когда идет данная реакция; третий характеризует энергетику реакции: для реакции с рождением радикала он равен  $\exp(-E_r/T)$  ( $E_r$  — "цена радикала"), для реакции с образованием пары смежных пентагонов —  $\exp(-E^*/T)$  ( $E^*$  — варьируемый параметр). Например, вероятность реакции, показанной на рис. 2, *b*, записывалась в виде

$$W = w \cdot D_2 (C_{R-2}^{\mu+4} / C_R^{\mu+6}) \exp(-2E^* \eta_5 / T), \quad (3)$$

где  $C_n^m = n! / (m!(n - m)!)$ ;  $\eta_5 = N_5 / (N_5 + N_6)$  — вероятность обнаружить пентагон среди многоугольников, смежных с вновь образуемым пентагоном;  $R = \mu + \rho + 6$  — число возможных положений радикала или торчащего атома;  $D_k$  — число участков поверхности между двумя возможными положениями радикала (или торчащего атома), отстоящими на  $k$  углеродных связей (так, на рис. 2, *a* показан участок с  $k = 3$ ).



**Рис. 4.** Состояние поверхности с числом вакантных радикалов  $\rho = 0$  и минимальной "дыркой", в которой это число радикалов можно разместить. Справа показана "дырка" и "остатки" цепочек, слева — "дырка" в собранном виде.

Множитель  $w$  задавался в виде

$$w = A \exp(-E_a / T), \quad (4)$$

где  $E_a = E_a(N_5, N_6)$ .

Характерные значения набора  $D_k$  с разными  $k$  определялись общими свойствами односвязной поверхности с данным числом пентагонов и гексагонов. В частности, нетрудно показать, что если при  $k > 3$   $D_k = 0$ , то  $D_3 - D_1 = N_5 - 6$ , в то время как сумма  $D_1 + D_2 + D_3$  равна, очевидно,  $R$ . Поэтому было достаточно независимо задать лишь одно из чисел  $D_1, D_2, D_3$ , например  $D_3$ . Мы полагали, что  $D_3 < 3$  и конфигурации поверхности с  $D_3 = 1, 2$  равновероятны.

Система уравнений (1) не позволяет проследить эволюцию кластера до конца, так как каждая из учтенных реакций предполагает возникновение одной новой связи и одного многоугольника. Для заключительных реакций такое предположение неверно. Поэтому расчет доводился до момента, когда размер несобранного куска поверхности (или "дырки"), способного уместить данное количество радикалов, становился минимальным. Если радикалов нет ( $\rho = 0$ ), такая дырка состоит из центрального гексагона и окружающих его шести многоугольников (рис. 4), т.е. число недостающих в фуллерене многоугольников  $\Delta N_\Sigma = 12 - N_5 + N_{6F} - N_6 = 7$  ( $N_{6F}$  — число гексагонов в фуллерене с данным числом атомов). Отсюда находится число многоугольников  $N_\Sigma$  в собранном куске поверхности такого кластера, который можно называть предфуллереном:  $N_5 + N_6 = 2 + N/2 - \Delta N_\Sigma$  при условии  $N_5 < 12$ . При  $R = 7$  ( $\rho = 1$ )  $\Delta N_\Sigma = 9$ . При  $\rho = 2$   $\Delta N_\Sigma = 10$ , а при  $\rho = 3$   $\Delta N_\Sigma = 11$ .

Будем представлять эволюцию кластера как его продвижение по таблице  $(N_5, N_6)$ , которую назовем таблицей активности (табл. 1 и 2). Для каждой двумерной таблицы числа  $N, \mu, \rho$  фиксированы. Ячейки таблицы должны заполняться значениями соответствующих концентраций.

Из сказанного выше следует, что мы можем следить за судьбой всех кластеров, расположенных в таблице активности не ниже диагонали  $N_\Sigma = 2 + N/2 - \Delta N_\Sigma$ .

Таблица 1.

$N_6$	$N_5$										
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
1	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
2	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
3	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
4	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
5	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
6	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
7	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
8	A	A	A	A	A	A	A	A	A	F	
9	A	A	A	A	A	A	A	A	F		
10	A	A	A	A	A	A	A	F			
11	A	A	A	A	A	A	F				
12	A	A	A	A	A	F					
13	S	S	S	S	S						

Примечание.  $N = 44$ ,  $\rho = 0$ .

Таблица 2.

$N_6$	$N_5$										
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
1	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
2	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
3	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
4	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
5	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
6	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
7	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
8	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
9	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
10	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
11	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
12	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
13	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
14	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
15	A	A	A	A	A	A	A	A	A	D	
16	A	A	A	A	A	A	A	A	A	F	
17	A	A	A	A	A	A	A	A	F		
18	A	A	A	A	A	A	A	F			
19	A	A	A	A	A	A	F				
20	A	A	A	A	A	F					
21	S	S	S	S	S						

Примечание.  $N = 60$ ,  $\rho = 0$ .

Примем для характеристики ячеек этой части таблицы следующую классификацию.

1. Ячейки, расположенные на диагонали  $N_\Sigma = 2 + N/2 - \Delta N_\Sigma$ , будем обозначать символом  $F$ . Считалось, что вероятность перехода отвечающих им кластеров в фуллерене определяется количеством границ пентагон-пентагон, которые должны быть образованы

$$W_{F \rightarrow \text{Full}} = w \exp(-E^* N_\nu \Delta N_5 / \Delta N_\Sigma T), \quad (5)$$

где  $\Delta N_5 = 12 - N_5$ ,  $N_\nu$  — число ребер в несобранном участке поверхности.

2. Ячейки с  $N_5 + N_6 = N_\Sigma$ ,  $N_5 < 12$ ,  $N_6 \leq N_{6F}$  отвечают кластеру на промежуточном этапе развития и обозначаются в таблице значком  $A$  (active).

3. Ячейки, отвечающие кластеру с недостаточным числом пентагонов и избыточным числом гексагонов, обозначены в таблице символом  $S$ . Такой кластер не может замкнуться при имеющемся числе атомов и существует далее в форме раковины ( $S$  — shell).

4. Ячейка таблицы с  $N_5 = 11$  должна отвечать почти замкнутому кластеру, не способному уже вместить в себя данное количество атомов. Такой кластер не может реализоваться, и его предшественник по числу пентагонов является тупиковым ( $D$  — deadlock). Поэтому правая граница кластеров типа  $A$ ,  $F$  условно проведена при  $N_5 = 10$ .

Судьба кластеров типа  $S$ ,  $D$  нас не интересует, поскольку они не могут превратиться в фуллерен. Эти кластеры являются конечными пунктами эволюции и устанавливают границы таблицы активности. Кластеры типа  $F$  со временем переходят в фуллерен. Поэтому вся совокупность объектов внутри границ

$$N_6 = N_{6F} + 1, \quad N_5 = 10, \quad N_5 + N_6 = 2 + N/2 - \Delta N_\Sigma$$

и фуллерены с данным  $N$  должны в конце концов прийти к равновесию, когда основная масса исходного продукта переходит в фуллерены, ячейки  $F$ ,  $S$  и  $D$ , а кластеров типа  $A$  почти не остается (если не учитывать обратные реакции, их не останется совсем, как и кластеров  $F$ ).

При проведении расчетов полагалось, что в начальный момент времени существуют трехкольцевые кластеры с центральным гексагоном и разным числом атомов в цепочках (от 26 до 74 атомов). Концентрация всех кластеров полагалась равной  $Y_N|_{t=0} = 0.5$ . Такое значение выбрано в условиях линейной задачи для того, чтобы, учитывая трансформацию нечетных кластеров в четные, сравнивать концентрацию фуллеренов с 1. Концентрация молекул  $C_2$  и температура  $T$  полагались неизменными на протяжении всего расчета.

Решение системы линейных уравнений первого порядка есть сумма огромного количества экспоненциальных слагаемых, которые могут быть найдены аналитически. Если пренебречь обратными реакциями распада кластеров, изменение концентрации всех кластеров можно записать в виде

$$Y_{N_5, N_6, \mu, \rho, N} = a_{N_5, N_6, \mu, \rho, N} [\exp(-t/\tau_1) - \exp(-w_{N_5, N_6, \mu, \rho, N}^d t)] + \sum \alpha_{(N_5, N_6, \mu, \rho, N), (N'_5, N'_6, \mu', \rho', N')} \times [\exp(-w_{N'_5, N'_6, \mu', \rho', N'}^d t) - \exp(-w_{N_5, N_6, \mu, \rho, N}^d t)], \quad (6)$$

где  $w_{N_5, N_6, \mu, \rho, N}^d$  — вероятность распада кластеров с данным набором за счет всех учетных реакций; суммирование идет по всем  $N'_5 < N_5$ ,  $N'_6 < N_6$  и всем  $\mu'$ ,  $\rho'$ .

Коэффициенты  $a$  и  $\alpha$  определяются цепочкой рекуррентных формул. Реально, однако, матрица  $\alpha$  занимает

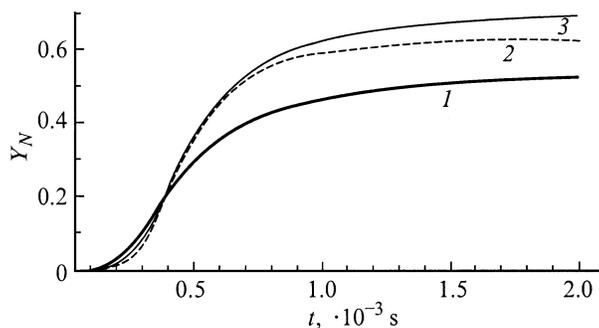
огромный объем памяти, и для учета всех пар  $N_5$ ,  $N_6$  памяти не хватило. Концентрация "не поместившихся" в аналитическое решение кластеров рассчитывалась по методу Рунге–Кутты.

На рис. 5 показана динамика формирования фуллеренов с разным числом атомов  $N$ . Видно, что уровень насыщения для приведенных кривых близок к 1. Для фуллеренов с малым  $N$  это происходит в силу того, что диагональ  $N_5 + N_6 = 2 + N/2 - \Delta N_\Sigma$  почти полностью перекрывает таблицу активности. Для фуллеренов с  $N = 56$ –66 направление наиболее интенсивного развития кластеров также проходит через данную диагональ и лишь малая их часть оседает в ячейках  $S$ ,  $D$ . Поэтому уровень насыщения также высок.

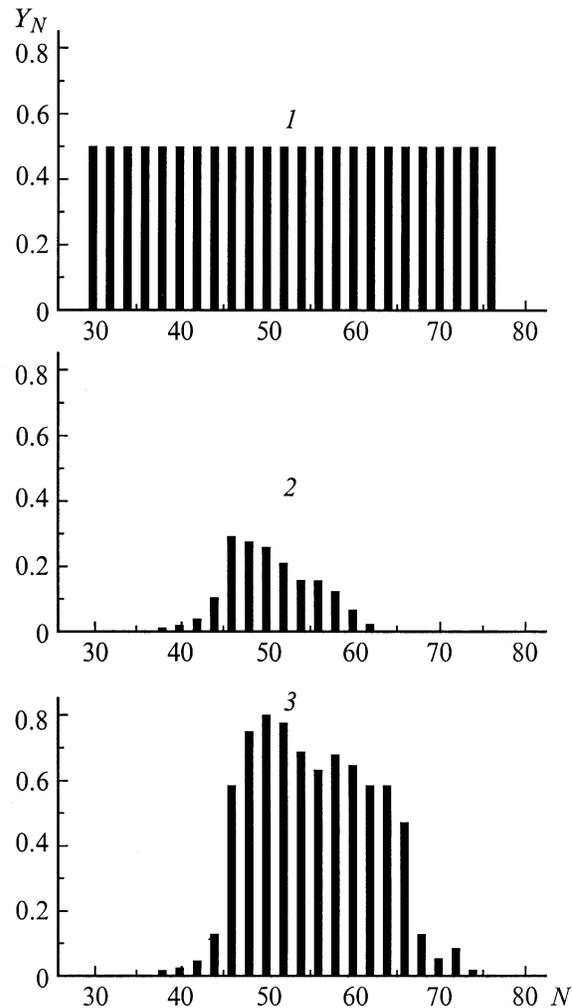
Характерное время выхода на насыщение в расчетах имеет порядок  $10^{-3}$  с. В работе [4] было экспериментально показано, что протяженность области, где происходит образование фуллеренов в дуге, составляет 2–3 см. При скорости истечения газодинамической струи из разряда  $\sim 2 \cdot 10^3$  см/с [5] время пролета через данную область также составляет  $\sim 10^{-3}$  с, что коррелирует с расчетом.

На рис. 6 показаны спектры фуллеренов на начальной стадии их роста (кривая 2) и в насыщении (кривая 3). Видно, что рассчитанные спектры сдвинуты относительно начального спектра трехкольцевых кластеров (ступеньки) примерно на 14–18 атомов (это соответствует прилипанию 2–3 молекул  $C_2$  к растущему ядру поверхности и 5–7 молекул к кольцам) и обрываются на уровне примерно в 68–70 атомов. Ограничение количества кластеров с большими  $N$  связано с тем, что по мере роста  $N$  диагональ  $N_5 + N_6 = 2 + N/2 - \Delta N_\Sigma$  таблицы активности перемещается вниз, в то время как направление перемещения кластеров по таблице активности через наиболее заселяемые ячейки меняется незначительно.

Если считать, что все атомы углерода, испарившиеся с анода дугового разряда, расходуются на образование исходных трехкольцевых кластеров, а конечные продукты эволюции кластеров с  $N \neq 60$  переходят в углеродную сажу, то из данных, приведенных на рис. 6, "процентное содержание фуллеренов в саже" получается  $\sim 9\%$ . Эта



**Рис. 5.** Рост с течением времени концентрации фуллеренов с разным числом атомов:  $N = 46$  (1),  $54$  (2),  $60$  (3),  $T = 0.3$  eV;  $n_2 = 10^{14}$  см $^{-3}$ .



**Рис. 6.** Исходные спектры трехкольцевых кластеров (1) и фуллеренов на раннем этапе развития (2) (десятикратное увеличение) и в насыщении (3).  $T = 0.3$  eV,  $n_2 = 10^{14}$  см $^{-3}$ .

величина хорошо согласуется с имеющимися экспериментальными данными [6], хотя такое совпадение может быть и чисто случайным.

Разработанная нами схема может быть включена в пространственный расчет концентраций различных кластеров в турбулентной струе, истекающей из области разрядного промежутка. Концентрация трехкольцевых кластеров, которая в данной работе задавалась "руками", в такой задаче будет вычисляться самосогласованно из начальных параметров разряда и известных свойств дуги. Результат такого расчета и рассмотрение специфических для плазмы реакций будут опубликованы в последующих частях данного цикла работ.

Авторы выражают большую благодарность А.А. Богданову за конструктивную и доброжелательную критику работы и Д.В. Афанасьеву за помощь в изготовлении рисунков.

Работа выполнена в рамках Российской научно-технической программы "Фуллерены и атомные кластеры", проект № 98-056 и при частичной финансовой поддержке фирмы "Фуллереновые технологии" (г. Санкт-Петербург).

## Список литературы

- [1] *Hunter J.M., Fye J.L., Jarrold M.F.* // J. Chem. Phys. 1993. Vol. 3. P. 1785–1795. *Hunter J.M., Fye J.L., Roskamp E.J., Jarrold M.F.* // J. Phys. Chem. 1994. Vol. 98. P. 1810–1818.
- [2] *Schweigert V.A., Alexandrov A.L., Morokov Y.N., Bedanov V.I.* // Chem. Phys. Lett. 1995. Vol. 235. P. 221–229.
- [3] *Schweigert V.A., Alexandrov A.L.* // Chem. Phys. Lett. 1996. Vol. 263. N 4. P. 551–556.
- [4] *Дюжнев Г.А., Каратаев В.И.* // ФТТ. 1994. Т. 36. Вып. 9. С. 2795.
- [5] *Афанасьев Д.В., Богданов А.А., Дюжнев Г.А.* и др. // ЖТФ. 1994. Т. 64. Вып. 10. С. 76–90. ЖТФ. 1997. Т. 67. Вып. 2. С. 125–133.