

01;02;04;12

## Образование фуллеренов в плазме газового разряда II. Динамика реакций между заряженными и нейтральными кластерами углерода

© 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.)

Рассмотрено формирование фуллереновых структур при наличии у кластеров углерода электрического заряда. Показано, что влияние плазмы как источника углерода на динамику изменения углеродных кластеров сводится исключительно к формированию начальных условий истечения плазменной струи из межэлектродного зазора.

Влияние плазмы на процессы образования фуллеренов достаточно наглядно в работе [1]. Суть полученных результатов сводится к тому, что при данном массовом расходе углерода выход фуллеренов может быть существенно различным при разных способах организации разряда.

Очевидно, что рассмотрение процессов в сильноточной дуге, включающих синтез фуллеренов как составную часть, исключительно сложно. При таком рассмотрении необходимо учитывать эрозию электродов, плазмообразующие процессы в межэлектродном зазоре, заполненном буферным газом, вынос струи газа в окружающее пространство и реакции между углеродными кластерами в этой струе.

Течение газа в сильноточной дуге определяется как тепловыми процессами, так и собственным магнитным полем. Приблизительный расчет скорости  $v_0$  переноса газа в дуге, сделанный в [2], дает значение  $v_0 = 151.2 \cdot (I/r_0)(T/P_{\text{He}})^{1/2}$ . При токе дуги  $I = 100$  А, радиусе канала дуги  $r_0 = 0.3$  см, температуре газа  $T = 0.3$  эВ, давлении буферного газа (гелия)  $P_{\text{He}} = 100$  Торг  $v_0$  составляет в соответствии с этой оценкой  $v_0 = 2 \cdot 10^3$  см/с. Число Рейнольдса достигает по крайней мере нескольких десятков и допускает существование течения лишь в виде турбулентной струи. Наталкиваясь на электроды, такая струя разворачивается и вытекает из зазора. Скорость истечения можно в первом приближении положить равной  $v_0$ . При разумных значениях температуры газа  $T = 0.3-1$  эВ скорость  $v_0$  всегда на порядок ниже звуковой.

Чтобы рассматривать взаимопревращения кластеров углерода в такой струе, необходимо как минимум представлять себе характерные значения исходных параметров на срезе зазора при  $r = r_0$ , т.е. концентрацию атомов  $N_1$ , температуру газа  $T$ , скорость  $v_0$  и эффективную начальную толщину струи  $d_0$  (необходимость введения  $d_0$ , отличной от ширины зазора  $d$ , связана с тем, что истечение гелия со струей требует притока его в зазор вдоль электродов и положение точки, где радиальная скорость меняет знак, должно устанавливаться самосо-

гласованно). Как будет видно из дальнейшего, именно этот набор исходных данных входит в состав безразмерных параметров в уравнениях баланса углеродных кластеров разных типов и определяет эволюцию этих кластеров.

Зависимость перечисленных параметров от внешних условий (ток, напряжение на зазоре и давление  $P_{\text{He}}$ ) неизвестна, за исключением зависимости для массового расхода углерода, т.е. для величины  $n_0 v_0 d$  (где  $n_0$  — суммарная концентрация всех возможных углеродных кластеров). Теоретический расчет стационарного состояния дуги исключительно сложен. Поэтому в данной работе считалось, что исходные параметры струи некоторым образом сформированы и акцент делался на то, какое влияние на динамику углеродных кластеров оказывает плазменная компонента струи.

Это влияние может быть следующим: сечения моно- и бимолекулярных реакций, в которые вступают кластеры, существенно зависят от того, несут ли они заряд; турбулентные коэффициенты переноса, определяющие время пребывания кластеров в наиболее эффективной для образования фуллеренов области температур, могут отличаться от соответствующих значений для нейтральных кластеров; формируемый спектр и выход фуллеренов могут зависеть от распределения кластеров на выходе межэлектродного зазора, т.е. от того, в какой пропорции присутствуют так элементы  $C_2$ , C,  $C_2^+$ ,  $C^+$ ; если концентрации углерода и буферного газа имеют один порядок величины, а степень ионизации плазмы достаточно высока, то на ход изменения температуры газа может влиять энергия, передаваемая ему от более горячей электронной компоненты.

Качественная картина взаимодействия и взаимопревращения кластеров, закладываемая в расчет, была следующей: при формировании как нейтральных, так и заряженных кластеров проходит определенная последовательность конфигураций: атомы  $\rightarrow$  молекулы  $\rightarrow$  цепочки  $\rightarrow$  кольца  $\rightarrow$  многокольцевые системы  $\rightarrow$  фуллерены [3], т.е. топологии заряженных и нейтральных кластеров идентичны.

На каждом этапе отличие ионных кластеров от нейтральных приводит к ускорению или замедлению реакций. Например, взаимодействие заряженной цепочки с нейтральной в первом приближении можно рассматривать как взаимодействие ион  $\rightarrow$  диполь, т.е. притяжение. Поэтому эффективный барьер коагуляции  $E_1$  должен снижаться. Если для коагуляции двух атомов  $E_1$ , оцененный в [4] на уровне 0.5 eV, для взаимодействия ион  $C^+ \rightarrow$  атом C уменьшается до нуля, то частота реакции должна увеличиться примерно втрое. С другой стороны, скручивание заряженной цепочки в кольцо крайне затруднено, так как сближающиеся концы цепочек неизбежно несут на себе заряд одного знака.

Можно подумать, что непосредственный вклад ионов  $C^+$ , существующий вблизи источника, не должен сильно влиять на выход фуллеренов, хотя скорость роста заряженных кластеров в ходе реакций коагуляции в несколько раз выше. Это связано, во-первых, с тем, что степень ионизации углерода в условиях большого количества буферного газа, по-видимому, не столь велика; во-вторых, с тем, что заряженные кластеры в условиях спадающей электронной температуры должны интенсивно рекомбинировать.

Несмотря на прогнозируемость окончательного результата, предлагаемая расчетная оценка представляется полезной по крайней мере потому, что позволяет определить реальные границы влияния плазмы на процесс образования фуллеренов.

### Параметры плазмы внутри веерного радиально-щелевого источника турбулентной струи

В работах [5,6], где авторы рассматривали струю из нейтральных атомов, никакой информации об источнике струи, кроме массового расхода углерода, не требовалось. В случае плазмы в качестве начальных условий на границе источника необходимо помимо температуры газа и концентрации углерода задавать электронную температуру  $T_e$  и концентрацию заряженной компоненты. Экспериментальной информации, которая позволила бы рассчитать баланс энергии в дуге, пока явно недостаточно. Поэтому в данной работе температура электронов в источнике  $T_e$ , температура газа  $T$  и массовый расход углерода задавались. Скорость всех компонент на выходе зазора полагалась одинаковой и равной  $v_0$ .

Концентрация различных компонент плазмы находилась из уравнений баланса. Считалось, что в условиях высоких  $T_e$  и  $T$  в межэлектродном зазоре присутствуют атомы C, ионы  $C^+$  и небольшое количество молекул  $C_2$  и ионов  $C_2^+$ . В расчете учитывались следующие реакции: образование молекул  $C_2$ :  $C + C \rightarrow C_2$  и  $C_2^+$ :  $C + C^+ \rightarrow C_2^+$  и обратные реакции их спонтанного развала; столкновительная ионизация-рекомбинация для C и  $C^+$ ; диссоциативная рекомбинация  $C_2 + e \rightarrow C + C^*$ , где  $C^*$  — возбужденный атом углерода.

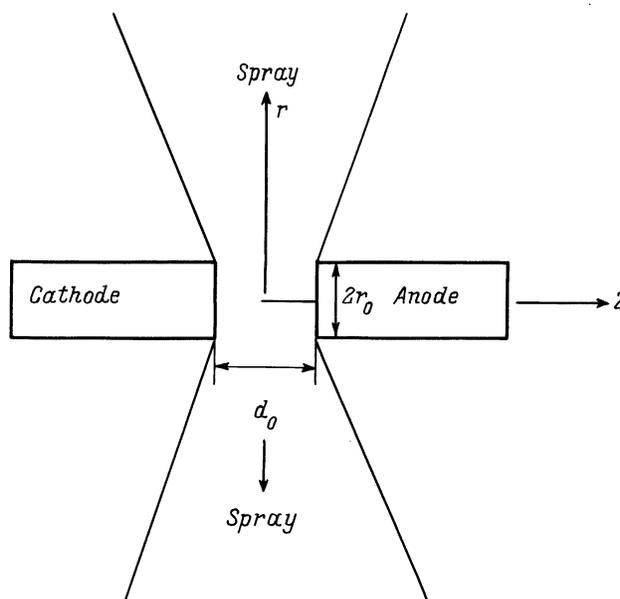


Рис. 1. Геометрия разрядного зазора и радиально-щелевой струи, истекающей из зазора.

Сечение образования молекулы  $C_2$  из двух атомов  $\sigma_0$ , как и в [4], полагалось равным  $\sigma_0 = \sigma_A \cdot \exp(-E_1/T)$ , где  $\sigma_A = 5.3 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$  в широком диапазоне давлений буферного газа.<sup>1</sup> Сечение реакции атом-ион задавалось в аналогичной форме  $\sigma_0^+ = \sigma_A \cdot t^1$ . Экспоненциальный фактор  $t^1$  варьировался. В наших расчетах полагалось  $t^1 = 1$ .

Константы обратного процесса спонтанного развала молекул полагались равными

$$\beta_2 = B_2 \exp(-E_2/T), \quad \beta_2^+ = B_2^+ \exp(-E_2^+/T),$$

где  $E_2$  и  $E_2^+$  — минимальные энергии потенциальных кривых для  $C_2$ ,  $C_2^+$ ; в расчете полагалось  $E_2 = E_2^+ = 6 \text{ eV}$ .

Константу диссоциативной рекомбинации  $K_{\text{diss}}$  для молекул углерода в имеющейся литературе найти не удалось, но она мало отличается для разных газов; в частности, для азота и кислорода при 1 eV  $K_{\text{diss}} \approx 2 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{s}$  и имеет схожую температурную зависимость. Такая же зависимость принята и для углерода.

В балансе атомов C и молекул  $C_0^+$  наряду с диссоциативной рекомбинацией следовало бы учесть и обратный процесс ассоциативной ионизации  $C + C^* \rightarrow C_2^+ + e$ , однако достоверной информации о скорости такой реакции не удалось найти не только для углерода, но также азота и кислорода. С другой стороны, реакция

<sup>1</sup> В действительности при давлениях гелия в 100–200 Torr образование димера  $C_2$  является процессом безбарьерной трехчастичной ассоциации с участием атома гелия и его сечение корректнее задавать в виде  $\sigma_0 = R_3 \cdot N_{\text{He}}/v_T$  с константой  $K_3$ , где  $N_{\text{He}}$  — концентрация гелия,  $v_1$  — тепловая скорость.

коагуляции  $C + C \rightarrow C_2$  с образованием нейтральной молекулы  $C_2$  имеет весьма большое сечение. На фоне такой реакции убыль атомов за счет ассоциативной ионизации можно считать несущественной для баланса атомов, а приток ионов  $C_2^+$  — несущественным по сравнению с результатом реакции  $C + C^+ \rightarrow C_2^+$ .

Расчет скорости ступенчатой ионизации–рекомбинации при столкновениях  $\Gamma_i = \beta_i N_1 n_e - \alpha n_e^3$ , насколько нам известно, для углерода не проводился. Поэтому, как и в случае диссоциативной рекомбинации, мы воспользовались данными по азоту [7]. В соответствии с этими данными при концентрации газа  $N_1$  на уровне  $N_1 = 10^{15} - 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  и температуре  $T_e = 1.2 - 1.4 \text{ eV}$  константа ионизации  $\beta_i$  составляет  $\beta_i = 10^{-12} - 10^{-13} \text{ cm}^{-3}/\text{s}$ , а скорость рекомбинации  $\alpha n_e^3$  значительно ниже скорости ионизации.

Будем считать, что дуга горит в плоскопараллельном зазоре катод–анод с круглыми электродами радиусом  $r_0$  и осью симметрии, проходящей через их центры (ось  $Z$  на рис. 1).

Уравнения баланса для компонент  $C$ ,  $C^+$ ,  $C_2$ ,  $C_2^+$  записывались следующим образом:

$$\begin{aligned} -\Gamma_i + R - N_1 \eta + \beta_2^+ N_2^+ + 2\beta_2 N_2 - \alpha_0^+ N_1 N_1^+ \\ - 2\alpha_0 N_1^+ N_1^+ + 2n_e K_{\text{diss}} N_2^+ = 0, \\ \Gamma_i - N_1^+ \eta + \beta_2^+ N_2^+ - \alpha_0^+ N_1^+ N_1 = 0, \\ -N_2 \eta - \beta_2 N_2 + \alpha_0^+ N_1^2 = 0, \\ -N_2^+ \eta - \beta_2^+ N_2^+ + \alpha_0^+ N_1^+ N_1 - n_e K_{\text{diss}} N_2^+ = 0, \end{aligned} \quad (1)$$

где  $n_e = N_1^+ + N_2^+$  — концентрация электронов;  $\alpha_0$  и  $\alpha_0^+$  — константы коагуляции атом–атом и атом–ион;  $\alpha_0 = v_T \sigma_0$ ,  $\alpha_0^+ = v_T \sigma_0^+$ ,  $v_T$  — тепловая скорость молекул  $C_2$ ;  $R$  — источник паров углерода в расчете на единицу объема разрядного зазора;  $\eta = 2v_0/r_0$ .

При решении системы (1) удобно задавать концентрацию  $N_1$ , а величину источника находить, ориентируясь на экспериментальное значение расхода углерода. Тогда, учитывая условие  $N_2^+ \ll N_1^+$ , имеем

$$\begin{aligned} N_1^+ &= [N_1 (\beta_2^+ \beta_i + \eta (\beta_i - \alpha_0^+)) - \eta (\beta_2^+ + \eta)] \\ &\times [\eta - N_1 (\beta_i - \alpha_0^+)]^{-1}, \\ N_2^+ &= \alpha_0^+ N_1^+ N_1 / (\eta + \beta_2^+ + n_e K_{\text{diss}}). \end{aligned} \quad (2)$$

Требование  $N_2^+ > 0$  и баланс ионов  $C^+$  определяют условие

$$\beta_i < \alpha_0^+ + \eta / N_1, \quad (3)$$

которое можно рассматривать как верхнюю границу электронной температуры  $T_e$ .

С другой стороны, совместное решение уравнений для  $C^+$  и  $C_2^+$  вместе с условием  $N_1^+ > 0$  задают нижний уровень  $T_e$ .

$$\beta_i > \eta [\alpha_0^+ + (\eta + \beta_2^+) / N_1] / (\beta_2^+ + \eta). \quad (4)$$

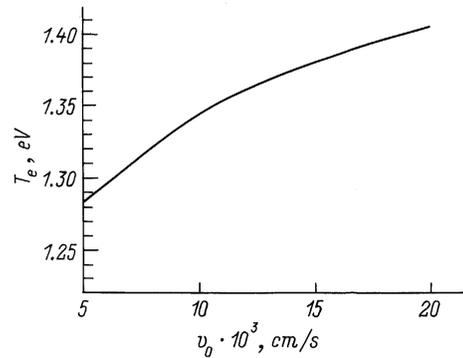


Рис. 2. Зависимость минимальной температуры  $T_e$  от скорости струи на срезе зазора  $v_0$  ( $T = 0.4 \text{ eV}$ ).

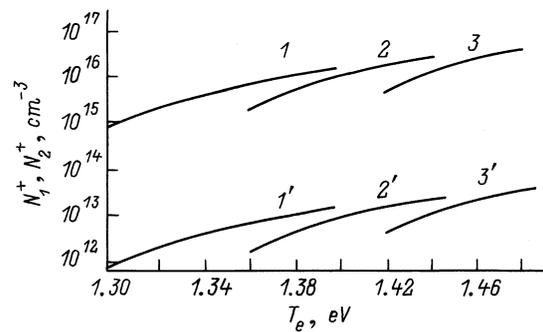


Рис. 3. Зависимости концентрации ионов  $C^+$  (1–3) и  $C_2^+$  (1'–3') от  $T_e$ .  $P_C = 20 \text{ Torr}$ ;  $v_0 = 5 \cdot 10^3$  (1, 1'),  $10^4$  (2, 2'),  $2 \cdot 10^4 \text{ cm/s}$  (3, 3').

Зависимость минимальной температуры  $T_e$  от скорости  $v_0$  при фиксированном давлении углерода  $P_C = 20 \text{ Torr}$  представлена на рис. 2. На рис. 3 показаны зависимости концентраций ионов  $C^+$  и  $C_2^+$  от  $T_e$  при нескольких скоростях  $v_0$ . Все показанные на рисунке кривые проведены до значений электронной температуры, примерно отвечающих предельной степени ионизации плазмы.

## Расчет изменения параметров плазмы и газа в струе

Как уже отмечалось ранее, реакции взаимопревращения кластеров за пределами разрядного зазора разворачиваются в условиях дозвуковой турбулентной струи. Существующие в настоящее время теории такой струи позволяют определить ее параметры лишь при условии малости концентрации одной из компонент, рассматриваемой как примесь. В этом случае температура газа и общая концентрация примеси (углерода) определяются линейными уравнениями турбулентного переноса и описываются простыми аналитическими решениями. На фоне этих решений и рассматриваются реакции взаимопревращений углеродных кластеров.

Мы опирались на наиболее простой вариант турбулентной теории — теорию Прандтля [8], позволяющую получить радиально-аксиальные зависимости общей концентрации примеси и температуры газа на основе уравнений пограничного слоя и гипотезы автомодельности решений, т. е. возможности записать решения для любой величины  $\mathfrak{R}(r, z)$  в виде  $\mathfrak{R} = \mathfrak{R}(r)f(z/r)$ . Выпишем эти решения.

Радиальная скорость  $v_r = v_r^m dF/d\psi$ , где  $v_r^m = v_0 \Theta_v/x$  — скорость газа в плоскости симметрии струи,  $x = r/r_0$ ;  $\psi = z/ar$ ;  $\Theta_v = 1.2 \cdot (d_0/2ar_0)^{1/2}$ ;  $a$  — универсальная экспериментальная константа турбулентной теории, равная примерно 0.12;  $F$  — универсальная функция рассчитана численно. Поперечная скорость  $v_z = av_r^m(\psi dF/d\psi - F(\psi))$ . Общая концентрация примеси  $n = n_m(v/v_r^m)^{Sc}$ , где  $n_m = n_0 \Theta_n/x$ ;  $\Theta_n = 1.2 \cdot (d_0/2ar_0)$ ;  $Sc$  — эмпирически определяемое турбулентное число Шмидта. Для радиально-щелевой геометрии задачи оптимальное согласие с экспериментом достигается при  $Sc = 0.8$ . Разность температур газа в струе и вне струи  $\delta T = \delta T_m(v/v_r^m)^{Pr}$ , где  $\delta T_m = \delta T_0 \Theta_T/x$ ,  $\Theta_T = 1.2(d_0/2ar_0)$ ;  $Pr$  — турбулентное число Прандтля.

Динамика углеродных кластеров описывалась системой уравнений непрерывности, усредненных по поперечной координате  $z$  в пределах струи. Как и в [5,6], мы отказались от решения двумерной задачи, так как константы всех реакций, описываемых в правой части уравнений, являются нелинейными функциями температур и концентраций, и гипотеза автомодельности для разных компонент примеси, скорее всего, не выполняется.

Включение в рассмотрение новых компонент по сравнению с теми, которые рассматривались в межэлектродном зазоре дуги, а именно нейтральных и заряженных цепочек и колец, вызывает необходимость учета следующих дополнительных реакций:  $C + C_2 \rightarrow C_3$ ,  $C + C_2^+ \rightarrow C_3^+$ ,  $C^+ + C_2 \rightarrow C_3^+$  — коагуляция атомов и ионов углерода с молекулами  $C_2$ ;  $C_2 + C_2 \rightarrow C_4$ ,  $C_2^+ + C_2 \rightarrow C_4^+$  — коагуляция заряженных и нейтральных молекул  $C_2$ ;  $C_m + C_n \rightarrow C_{m+n}$ ,  $C_m + C_n^+ \rightarrow C_{m+n}^+$  — коагуляция цепочек разных размеров;  $C_n \rightarrow R_n$  — скручивание цепочки в кольцо;  $C_n^+ + e \rightarrow C_{n-1} + C$  — диссоциативная рекомбинация заряженных цепочек.

Константы этих реакций выбирались следующим образом. Сечения коагуляции  $\sigma_{mk}$  нейтральных цепочек рассчитаны в [4]. Как и в [4], мы полагали, что  $\sigma_{mk}$  пропорциональны экспоненциальному фактору  $t^0 = \exp(-E_1/T)$ , общему для всех столкновений кластеров до цепочек включительно. Считалось, что сечения коагуляции нейтрального кластера с заряженным определяются теми же весовыми множителями, что и нейтральные, и экспоненциальный фактор  $t^1(T)$  можно варьировать. Для результатов, приведенных ниже, он просто равен 1, но для общности сохранен в уравнениях баланса.

Нам не удалось найти никаких экспериментальных данных о скоростях диссоциативной рекомбинации заря-

женных цепочек  $C_n^+$  и даже о возможных каналах такой реакции. Поэтому считалось, что в ходе рекомбинации длина цепочки уменьшается на 1, а константа реакции такая же, как для рекомбинации цепочки  $C_2^+$ . Такое представление основано на том, что наиболее слабосвязанным атомом цепочки должен быть именно крайний ее атом.

Выпишем с учетом сказанного в качестве иллюстрации уравнения баланса для атомов  $C$  и заряженных цепочек  $C_n^+$ .

Атомы

$$\begin{aligned} d\nu_1/dx + \nu_1/x = Ax \left[ -\Gamma_i/\alpha_A v_T - \xi_{11}\nu_1(2\nu t^0 + \nu_1^+ t^+) \right. \\ \left. - \xi_{12}\nu_1(\nu_2 t^0 + \nu_2^+ t^+) - \nu_1 \sum_{c=3} \xi_{1c}(\gamma_c^+ t_c^+ \gamma_c t^0) \right] \\ + (1/\sigma_A v_T n_0) \left[ (2\beta_2\nu_2 + \beta_2^+\nu_2) \right. \\ \left. + (\nu_e K_{\text{diss}}/\sigma_A v_T)(2\nu_2^+ + \sum_{c=3} \gamma_c^+) \right]. \quad (5) \end{aligned}$$

Нейтральные цепочки размером  $c$

$$\begin{aligned} d\gamma_c/dx + \gamma_c/x = Ax \left[ -\xi_{1c}(\nu_1 t^0 + \nu_1^+ t^+) \gamma_c \right. \\ \left. + \xi_{1,c-1}(\nu_1 t^0 \gamma_{c-1} + \nu_1^+ t^+ \gamma_{c-1}^+) \right. \\ \left. + \xi_{2,2-c}(\nu_2 t^0 \gamma_{c-2} + \nu_2^+ t^0 \gamma_{c-2}^+) \right. \\ \left. - \xi_{2,c}(\nu_2 t^0 + \nu_2^+ t^+) + \sum_d \xi_{d,c-d}(\gamma_d t^0 + \gamma_d^+ t^+) \gamma_{c-d} \right. \\ \left. - \gamma_c \sum_d \xi_{d,c}(\gamma_d t^0 + \gamma_d^+ t^+) - \gamma_c^2 \xi_{c,c} t^0 \right. \\ \left. + K_{\text{diss}} \gamma_{c+1}^+ / \sigma_A v_T \right] - w_0 r_0 x \gamma_c / v_0 \Theta_v, \quad (6) \end{aligned}$$

где  $A = \sigma_a r_0 n_0 v_T \Theta_n / \Theta_v v_0$ ;  $\xi_{m,k} = ((m+k)/mk)^{1/2}$ ;  $\nu_1, \nu_1^+, \gamma_c, \gamma_c^+$  — концентрации атомов, ионов  $C^+$ , нейтральных и заряженных цепочек, отнесенные к  $n_0$ ;  $w_c$  — вероятность сворачивания цепочки в кольцо.

Исходным уравнением для определения закона спада температуры было уравнение баланса энергии частично ионизованной плазмы в форме [9]

$$\begin{aligned} \text{div} \left( (5/2) n v_{Te} - n \chi \nabla T_e \right) = -n v \nabla \varphi - E_i \Gamma_i \\ - n v_T (3/2) N_{\text{He}} (T_e - T) (m/M_{\text{He}}) \sigma_{e-\text{He}}, \quad (7) \end{aligned}$$

где  $n \chi = k = n v_{Te} / \sigma_{e-\text{He}} N_{\text{He}}$  — электронная теплопроводность, обусловленная столкновениями с атомами гелия;  $\varphi$  — потенциал плазмы;  $\sigma_{e-\text{He}} = 5 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$  [10] — сечение упругого рассеяния электрона на гелии.

Следуя общей схеме построения турбулентных решений [8], данное уравнение следует усреднить и задать средние по времени типа  $\langle \delta v \delta T_e \rangle$  и т. д. Так, среднее  $\langle \delta v \delta T_e \rangle$  следовало бы положить равным

$\langle \delta v \delta T_e \rangle = (l_u 2 / Pr_{Te}) |\partial v_z / \partial z| \partial T_e / \partial z$ , где  $l_u$  — характерная длина смещения для скорости. К сожалению, об эмпирических постоянных типа  $Pr_{Te}$  ничего достоверно неизвестно, кроме того, нет никаких аргументов в пользу того, что для  $T_e$  может быть справедлива гипотеза автомодельности. Поэтому, учитывая большие потери энергии электронов при столкновении с буферным газом, турбулентные потери в уравнении (7) не учитывались. Полученную таким образом кривую температуры можно считать верхней оценкой.

После подстановки в (7) значения  $\nabla \varphi$ , выведенного из уравнения движения электронов в виде

$$n_e v = -\mu [-n \nabla \varphi + T_e \nabla n_e + n_e \nabla T_e (1 + k_e T)]$$

(где  $\mu$  — подвижность электронов), и учета баланса числа электронов в виде  $\text{div}(n_e v) = \Gamma_i$  получаем

$$2n_e (v \nabla T_e) - \chi \cdot \text{div}(n_e \nabla T_e) = n_e v^2 / \mu + \Gamma_i \cdot (-E_i - 3T_e / 2) - G, \quad (8)$$

где  $G = n_e v_{Te} \cdot (3/2) \cdot N_{He} \cdot (T_e - T) (m / M_{He}) \cdot \sigma_{e-He}$ .

Оценим роль разных слагаемых в правой части уравнения. Отношение  $\Gamma_i E_i / G$  составляет 0.05 при  $N_C / N_{He} = 1/5$  и сечении  $\sigma_{\text{ион}} = 10^{-12} \text{ cm}^2$  (что соответствует температуре  $T_e = 1.3 \text{ eV}$ ); отношение  $n_e v^2 \mu^{-1} / G \approx (T_e / (T_e - T)) \cdot (v / v_{Te})^2 \cdot (m / M_{He})^{-1}$  также много меньше 1. Таким образом, доминирует член  $G$ , описывающий передачу энергии от электронов к атомам буферного газа.

В левой части уравнения отношение потоков энергии, переносимых вместе со струей и за счет теплопроводности, составляет  $v_0 T_e / k dT_e / dx \sim L / 300 r_0 \ll 1$  при  $v_0 = 2 \cdot 10^3 \text{ cm/s}$ , где  $L$  — характерный масштаб спада температуры  $T_e$ . Таким образом, в отличие от сверхзвуковых струй в левой части доминирует перенос энергии за счет теплопроводности и уравнение приобретает вид

$$(r^{-1} + n_e^{-1} dn_e / dx) dT_e / dx + d^2 T_e / dx^2 = (9/4) (r_0 N_{He} \sigma_{e-He})^2 (T_e - T) (m / M_{He}). \quad (9)$$

Для решения дифференциального уравнения второго порядка необходимо знать производную  $dT_e / dx$  на границе источника, которая определяется неизвестным нам балансом энергии. Поэтому поступим следующим образом: пренебрежем величиной  $n_e^{-1} dn_e / dx$  по сравнению с 1, и, учитывая зависимость  $T \sim 1/x$ , выберем решение уравнения следующим образом:

$$T_e = (T_e^{(0)} - T_0) K_0 (\lambda^{1/2} x) / K_0 \lambda^{1/2} + T_0 / x, \quad (10)$$

где  $\lambda = (9/4) \cdot (r_0 N_{He} \sigma_{e-He})^2 (m / M_{He})$ ;  $T_e^{(0)} = T_e(x=1)$ ,  $T_0 = T(x=1)$ .

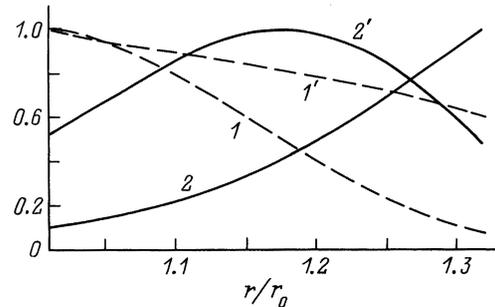
Второе слагаемое в (10) — частное решение неоднородного уравнения, первое — общее решение однородного. Множитель при функции Бесселя мнимого аргумента  $K_0(\lambda^{1/2} x)$  выбран исходя из граничного условия  $T_e = T_e^{(0)}$  при  $x = 1$ .

## Результаты расчета и их обсуждение

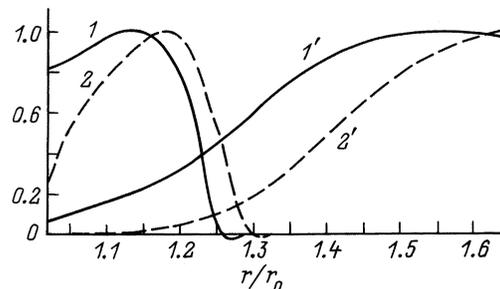
На рис. 4 представлены в относительных единицах радиальные распределения концентрации атомов C, ионов  $C^+$ , молекул  $C_2$  и ионов  $C_2^+$ . Приведенные значения концентраций нормированы на их максимальное значение на рассматриваемом интервале  $(1, x)$ . Видно, что концентрация молекулярных ионов нарастает значительно быстрее, чем нейтральных молекул  $C_2$ , но и спадает затем гораздо быстрее. Это связано не только с интенсивной рекомбинацией, но и с гибелью ионов  $C_2^+$  за счет слияния с другими кластерами.

Те же закономерности проявляются и для цепочек  $C_2^+$ , несмотря на то, что в отличие от нейтральных цепочек канал их гибели через скручивание в кольцо практически перекрыт. Концентрация цепочек  $C_2^+$  (рис. 5, кривая 2) уменьшается до нуля, когда концентрация нейтральных цепочек того же размера еще не успела выйти на максимум. Таким образом, в условиях, представленных на рис. 5, плазма по сути не распространяется дальше, чем на 0.5 радиуса разрядного зазора.

Рассмотрение весьма широкого диапазона условий (по скорости от  $2 \cdot 10^3$  до  $2 \cdot 10^4 \text{ cm/s}$ , по концентрации атомов углерода на входе струи от  $5 \cdot 10^{15}$  до  $5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) показывает, что в самом оптимальном случае плазма не



**Рис. 4.** Радиальные распределения концентрации ионов  $C^+$  (1), молекулярных ионов  $C_2^+$  (2), атомов C (1') и молекул  $C_2$  (2').  $P_C = 20 \text{ Torr}$ ,  $P_{He} = 200 \text{ Torr}$ ,  $T = 0.4 \text{ eV}$ ,  $T_e = 1.42 \text{ eV}$ ,  $v_0 = 2 \cdot 10^4 \text{ cm/s}$ ,  $N_1 = 4.2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ,  $N_1^+ = 3.82 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ ,  $N_2^+(1) = 3.31 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ .



**Рис. 5.** Радиальные распределения концентрации заряженных цепочек  $C_3^+$  (1),  $C_6^+$  (2) и нейтральных цепочек  $C_3$  (1'),  $C_6$  (2'). Параметры расчета соответствуют рис. 4.

должна распространяться далее, чем на  $(0.5-1)r_0$ . При этом концентрация нейтральных цепочек в момент, когда заряженных кластеров уже не остается, примерно пропорциональна суммарной концентрации заряженных и нейтральных мономеров на входе струи, т. е. информация о степени ионизации исходной плазмы остается почти забытой. Таким образом, влияние плазмы как источника углерода на динамику изменения углеродных кластеров сводится исключительно к формированию начальных условий истечения струи из зазора, т. е. начальной скорости, температуры и концентрации.

Мы благодарны А.А. Богданову за обсуждение полученных результатов.

Работа выполнена в рамках Российской научно-технической программы "Фуллерены и атомные кластеры" (проект № 98-056).

## Список литературы

- [1] *Афанасьев Д., Блинов И., Богданов А.* // ЖТФ. 1994. Т. 64. Вып. 10. С. 76–90.
- [2] *Ramakrishnan S., Stokes A., Lowke J.* // J. Phys. D. 1978. Vol. 11. P. 2267–2280.
- [3] *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.
- [4] *Schwiebert V.A., Alexandrov A.L., Morokov Y.N., Bedanov V.I.* // Chem. Phys. Lett. 1995. Vol. 235. P. 221.
- [5] *Nerushev G.A., Sukhinin G.I.* // Lett. J. Techn. Phys. 1995. Vol. 21. N 13. P. 50–54.
- [6] *Крестинин А.В., Моравский А.П., Теснер П.А.* // Химическая физика. 1998. Т. 17. Вып. 9. С. 70–85.
- [7] *Потапов А.В., Цветкова Л.Е., Антропов В.И., Волкова Г.И.* // Опт. и спектр. 1976. Т. 43. Вып. 3. С. 112–118.
- [8] *Абрамович Г.Н.* Теория турбулентных струй. М.: Наука, 1984. 560 с.
- [9] *Термоэмиссионные преобразователи и низкотемпературная плазма* / Под ред. Б.Я. Мойжеса, Г.Е. Пикуса. М., 1973. 480 с.
- [10] *Биберман Л.М., Воробьев В.С., Якубов И.Т.* Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы. М.: Наука, 1982. 375 с.