01;10

Кинетика ориентированного взаимодействия ускоренных частиц с нехиральными углеродными нанотрубками

© С.И. Матюхин, С.Ю. Гришина

Орловский государственный технический университет
E-mail: sim1@mail.ru
Орловский государственный аграрный университет
E-mail: sim1@mail.ru

Поступило в Редакцию 28 октября 2004 г.

Представлены результаты исследования кинетики каналирования ускоренных частиц в нехиральных (т.е. отличных от „armchair“ и „zigzag“) углеродных нанотрубках. Основное внимание уделяется ориентированному движению положительных ионов. Исходя из первых принципов, на основе стохастических уравнений движения частиц внутри нанотрубок построено и решено уравнение Фоккера–Планка для функции распределения частиц по поперечным переменным. Получены простые аналитические формулы для функции распределения частиц по поперечным энергиям, для их радиального распределения, а также для длины деканалирования частиц из нехиральных нанотрубок.

Как известно [1–3], существующие способы допирования фуллеренов и нанотрубок, которые в большинстве своем основаны на внедрении примесей из парогазовой фазы в процессе синтеза наночастиц, характеризуются низкой производительностью и непригодны для быстрого перестраивания режимов, особенно в мультистадийных комбинациях. Вследствие чего задача внедрения в углеродные наноструктуры ионов, атомов или молекул является на сегодняшний день центральной проблемой наноразмерных технологий.

В качестве решения этой проблемы в работах [4–6] было предложено использовать углубленное легирование фуллеренов и нанотрубок ориентированными пучками ускоренных частиц. В работах [7–9] была изучена динамика ориентированного движения частиц в нехиральных нанотрубках и показано, что такое движение вполне уместно назвать режимом каналирования [10,11]. При каналировании атомные частицы, рассеиваясь на электронах, могут терять энергию быстрее, нежели вылетают из нанотрубок (каналирование со „стопом“ [7–9]). Таким образом, используя эффект каналирования и варьируя энергию пучка, можно создавать оптимальные условия для ионной имплантации частиц в нанотрубки.

В настоящей работе представлены результаты исследования кинетики каналирования ускоренных частиц в нехиральных углеродных нанотрубках. Основное внимание уделяется ориентированному движению положительных ионов.

В нехиральных нанотрубках каналирование ионов характеризуется тем, что поперечная по отношению к оси нанотрубки энергия частиц $E_\perp$ и их момент импульса μ относительно этой оси являются адиабатическими инвариантами [8,9]. Поэтому полная функция распределения частиц $\Phi(r, \varphi, \mu, E_\perp; t)$, где r и φ — поперечные координаты частиц (в полярной системе координат), в любой момент времени t может быть представлена в виде

$$\Phi(r, \varphi, \mu, E_\perp; t) = \frac{\Phi(\mu, E_\perp; t)}{C(\mu, E_\perp)\sqrt{E_\perp - \frac{\mu^2}{2Mr^2} - U(r)}}, \tag{1}$$

где нормировочный множитель

$$C(\mu, E_\perp) = 2\pi \int\limits_{R(\mu, E_\perp)} \frac{dr}{\sqrt{E_\perp - \frac{\mu^2}{2Mr^2} - U(r)}}; \tag{2}$$

$R(\mu, E_\perp)$ — доступная для движения частиц область, определяемая неравенством:

$$E_\perp - \frac{\mu^2}{2Mr^2} - U(r) \geqslant 0; \tag{3}$$

$U(r)$ — непрерывный потенциал [7–9], описывающий взаимодействие частиц со стенками нанотрубки; M — масса частиц; $M \approx Am_p$, где m_p — масса протона.

Функция $\Phi(\mu, E_\perp; t)$ в выражении (1) — это функция распределения частиц по медленно изменяющимся переменным $E_\perp$ и μ. Временна́я эволюция этого распределения определяется действием на каналированные частицы случайных сил, обусловленных дискретностью стенок нанотрубки, тепловыми колебаниями ее атомов, рассеянием частиц на атомных электронах, и описывается следующим уравнением Фоккера–Планка ($\Phi \equiv \Phi(\mu, E_\perp; t)$):

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial \mu}\left[A_0 \mu \Phi + \frac{D_0}{\omega_0^2} E_\perp \frac{\partial \Phi}{\partial \mu} + D_0 \mu \frac{\partial \Phi}{\partial E_\perp}\right] + \frac{\partial}{\partial E_\perp}\left[A_0 E_\perp \Phi + D_0 \mu \frac{\partial \Phi}{\partial \mu} + D_0 E_\perp \frac{\partial \Phi}{\partial E_\perp}\right]. \tag{4}$$

Уравнение (4) получено стандартными методами теории случайных процессов [12–14] на основе стохастических уравнений движения частиц внутри нанотрубок в гармоническом приближении для энергии $U(r)$ (ω_0 — частота поперечных колебаний ионов). Его коэффициенты сноса (A_0) и диффузии (D_0) целиком определяются свойствами случайных сил, действующих на каналированные частицы. При этом, как показывают наши расчеты, наибольшее воздействие на движение ионов оказывают случайные силы, обусловленные рассеянием на электронах, поэтому

$$A_0 \approx \frac{1}{Mv}\left(\frac{dE}{dz}\right)_e, \qquad D_0 \approx \frac{m_e v}{M}\left(\frac{dE}{dz}\right)_e, \tag{5}$$

где $(dE/dz)_e$ — средние потери энергии ионов за счет рассеяния на электронах, v — их скорость, m_e — масса электрона.

Решение уравнения (4) должно удовлетворять заданному начальному условию $\Phi(\mu, E_\perp; 0) = \Phi_0(\mu, E_\perp)$ и граничным условиям вида:

$$\Phi(\mu, 0; t) < +\infty, \qquad \Phi(\mu, E_{\perp c}; t) = 0, \tag{6}$$

которые соответствуют ограниченности потока частиц при $E_\perp = 0$ и деканалированию частиц с критической поперечной энергией $E_{\perp c} = E\psi_c^2$, где E — полная энергия частиц, ψ_c — критический угол каналирования [9]. Указанное решение может быть получено методом разделения переменных и для ионов с энергией $E > 0.5A(m_p/m_e)E_{\perp c}$, где A — атомная масса иона (в а.е.м.), на достаточно большой глубине z

проникновения в нанотрубку имеет вид

$$\Phi(\mu, E_\perp; z) \approx C_1 \left(1 - \frac{E_\perp + \omega_0\mu}{E_{\perp c} + \omega_0\mu}\right)\left(1 - \frac{E_\perp - \omega_0\mu}{E_{\perp c} - \omega_0\mu}\right) \exp\left(-\frac{z}{R_{ch}(\mu)}\right), \tag{7}$$

где C_1 — нормировочный множитель, определяемый начальным распределением частиц:

$$C_1 \approx \frac{27\omega_0}{E_{\perp c}^2} \int\limits_0^{E_{\perp c}} dE_\perp \int\limits_0^{E_\perp/\omega_0} d\mu \cdot \Phi_0(\mu, E_\perp)\left(1 - \frac{E_\perp + \omega_0\mu}{E_{\perp c} + \omega_0\mu}\right)\left(1 - \frac{E_\perp - \omega_0\mu}{E_{\perp c} - \omega_0\mu}\right), \tag{8}$$

$R_{ch}(\mu)$ — длина деканалирования частиц с угловым моментом μ:

$$R_{ch}(\mu) \approx A \cdot \frac{m_p}{m_e} \cdot \frac{E_{\perp c}^2 - \omega_0^2\mu^2}{4E_{\perp c}(dE/dz)_e}. \tag{9}$$

Выражение (9) показывает, что из нехиральных нанотрубок быстрее всего деканалируют те частицы, у которых $\mu \neq 0$. Таким образом, на достаточно большой глубине z внутри нанотрубок остаются ионы с $\mu \approx 0$, для которых

$$\Phi(\mu, E_\perp; z) \approx C_1 \left(1 - \frac{E_\perp}{E_{\perp c}}\right)^2 \cdot \delta\left(\frac{\omega_0\mu}{E_{\perp c}}\right) \exp\left(-\frac{z}{R_{ch}}\right), \tag{10}$$

где $\delta(\mu)$ — дельта-функция Дирака.

Длина деканалирования таких ионов

$$R_{ch} \approx \frac{Am_p/m_e}{4(dE/dz)_e} \cdot E_{\perp c}, \tag{11}$$

а их радиальное распределение, которое может быть получено путем интегрирования выражения (1) по поперечным переменным $E_\perp$, μ и φ, имеет вид

$$\Phi(r; z) \approx C_1^* \left(1 - \frac{U(r)}{E_{\perp c}}\right)^{5/2} \exp\left(-\frac{z}{R_{ch}}\right), \tag{12}$$

где постоянная C_1^* определяется из условия нормировки распределения (12) на величину C_1 [см. формулу (8)] при $z = 0$.

С точки зрения ионной имплантации частиц в нехиральные нанотрубки наибольший интерес вызывают каналированные ионы с энергией $E \leqslant 0.5A(m_p/m_e)E_{\perp c}$. Такие частицы, быстро теряя энергию при рассеянии на электронах, практически не вылетают из нанотрубок, т.е. их длина деканалирования $R_{ch} \to \infty$. За время $\tau \approx Mv \cdot (dE/dz)_e^{-1}$ их угловой момент μ достигает своего нулевого значения ($\mu \to 0$); при этом функция распределения частиц по поперечным энергиям, как показывает решение уравнения (4), определяется выражением

$$\Phi(\mu, E_\perp; z) \approx C_0 \cdot \delta(\mu) \exp\left(-\frac{E_\perp}{T_\perp}\right) \tag{13}$$

и имеет вид распределения Больцмана с малой поперечной температурой

$$T_\perp \approx \frac{2m_e}{Am_p} \cdot E. \tag{14}$$

Нормировочный множитель C_0 в формуле (13) определяется начальным распределением частиц $\Phi_0(\mu, E_\perp)$:

$$C_0 \approx \frac{1}{T_\perp} \int\limits_0^{E_{\perp c}} dE_\perp \int\limits_0^{E_\perp/\omega_0} d\mu \cdot \Phi_0(\mu, E_\perp). \tag{15}$$

Радиальное распределение частиц, описываемых выражением (13), имеет вид

$$\Phi(r; z) \approx C_0^* \cdot \mathrm{erf}\left(\sqrt{\frac{E_{\perp c} - U(r)}{T_\perp}}\right) \exp\left(-\frac{U(r)}{T_\perp}\right), \tag{16}$$

где постоянная C_0^* определяется из условия нормировки распределения (16) на величину C_0.

Полученные результаты показывают, что для ионной имплантации частиц в нехиральные нанотрубки выгоднее всего использовать ионные пучки с энергией $E \leqslant 0.5A(m_p/m_e)E_{\perp c}$. Если угол ψ между направлением такого пучка и осью нанотрубок будет меньше критического угла ψ_c [7–9], частицы пучка будут захватываться в режим каналирования; при этом их распределение по поперечным по отношению к оси нанотрубок энергиям независимо от формы начального распределения будет иметь вид распределения Больцмана (13) с малой поперечной температурой (14), а радиальное распределение будет определяться выражением (16).

Если длина нанотрубок L будет равна или окажется больше характерного значения $L_0 \approx E \cdot (dE/dz)_e^{-1}$, каналированные частицы, теряя энергию при рассеянии на электронах, будут „застревать" внутри нанотрубок, образуя эндоэдральные структуры. Реализуется режим каналирования со „стопом" [7–9]. В противном случае (при $L < L_0$) каналированные частицы будут пролетать через нанотрубки без остановки. Однако на выходе такие частицы будут формировать пучки, расходимость β которых будет определяться только поперечной температурой (14) и не будет зависеть от энергии и расходимости исходного пучка частиц: $\beta \approx \sqrt{T_\perp/E} = \sqrt{2m_e/(Am_p)} \approx 3.3 \cdot 10^{-2}/\sqrt{A}$. Будет наблюдаться фокусировка ионного пучка короткими нанотрубками [7–9].

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 03–03–96488).

Список литературы

[1] *Елецкий А.В.* // УФН. 2000. Т. 170. № 2. С. 113.
[2] *Molecular* Nanostructures / Eds. Kuzmany T. et al. Singapore, 1998.
[3] *Science* and Application of Nanotubes // Eds D. Tomanek and R.J. Enbody. N. Y., 2000.
[4] *Рожков В.В., Матюхин С.И.* // Труды XV Междунар. конф. по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению. Харьков, 2002. С. 277.
[5] *Матюхин С.И.* // Материалы I Всерос. конф. „Физико-химические процессы в конденсированном состоянии и на межфазных границах". Воронеж, 2002. С. 217.
[6] *Матюхин С.И.* // Тез. докл. Междунар. конф. „Химия твердого тела и современные микро- и нанотехнологии". Ставрополь, 2002. С. 77.
[7] *Матюхин С.И., Гришина С.Ю.* // Тез. докл. XV Всерос. симпозиума „Современная химическая физика". М., 2003. С. 71.
[8] *Матюхин С.И., Гришина С.Ю.* // Сб. трудов 12-й Междунар. конф. по радиационной физике и химии неорганических материалов. Томск, 2003. С. 344.
[9] *Матюхин С.И., Гришина С.Ю.* // Письма в ЖТФ. 2004. Т. 30. В. 20. С. 76.

[10] *Lindhard J.* // Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 1965. V. 34. N 14. P. 49.
[11] *Оцуки Е.-Х.* Взаимодействие заряженных частиц с твердыми телами. М., 1985.
[12] *Бакай А.С., Любарский Г.Я., Рожков В.В.* // ЖТФ. 1965. Т. 35. № 9. С. 1525.
[13] *Rozhkov V.V.* // Phys. Stat. Sol. (b). 1979. V. 5. P. 463.
[14] *Гардинер К.В.* Стохастические методы в естественных науках. М., 1986.