

03;04
©1995

СЕЧЕНИЕ ПРИЛИПАНИЯ ЭЛЕКТРОНА К ФУЛЛЕРЕНУ В ПУЧКЕ

А.А.Востриков, Д.Ю.Дубов, А.А.Агарков

Методом пересекающихся молекулярного и электронного пучков в диапазоне энергий электронов E_e от 0 до 22 эВ измерено сечение прилипания электронов σ^- к молекуле C_{60} . Обнаружено, что сечение прилипания имеет резко выраженный максимум при $E_e = 0.15$ эВ, где достигает 84 \AA^2 . В диапазоне $0.5 < E_e < 6$ эВ наблюдается неравномерное изменение величины σ^- от 25 до 32 \AA^2 . При $E_e > 6$ эВ происходит резкое уменьшение сечения σ^- и проявляется эффект автоотрыва электрона за время движения анионов до коллектора ионов.

1. После того как в [1] был предложен метод получения макроколичеств практически чистой смеси C_{60}/C_{70} , резко увеличилось число работ с фуллеренами. В частности, исследовалось прилипание электронов к фуллеренам [2-5]. В [2,3] измерены константы скорости прилипания тепловых электронов соответственно к C_{60} и C_{70} в дозвуковом потоке в области послесвечения микроволнового разряда. Оказалось, что максимум сечения σ^- для молекулы C_{60} реализуется при $E_e = 0.26$ эВ, где $\sigma^- = 80 \text{ \AA}^2$. Позднее авторы изменили эту величину до 100 \AA^2 [5]. Эффективность образования C_{70}^- при $E_e = 0.26$ эВ оказалась меньше в 1.7 раза [3].

В [4,5] с использованием эффузионного пучка смеси C_{60}/C_{70} и масс-спектрометра получены кривые эффективности прилипания электронов к молекулам C_{60} и C_{70} . Авторы [4] из сравнения тока ионов C_{60}^- с током SF_6^- при $E_e = 0$ эВ оценили σ^- для C_{60} в 10^4 \AA^2 . Авторы [5] сравнили свои измерения с данными [2] при $E_e = 0.26$ эВ.

2. В данной работе сечение σ^- определяли из измерений токов анионов C_{60}^-/C_{70}^- , образующихся в пересекающихся пучках фуллеренов и электронов, по формуле $\sigma^- = I^-/I_e \cdot n \cdot l$, где I^- — ток отрицательных ионов, I_e — ток электронов, n — плотность молекул фуллеренов в области пересечения пучков, а l — длина этой области. Методика и техника измерения σ^- описана ранее [6]. Важ-

но отметить, что электронный пучок получали с помощью оксидного катода и работали с токами $I_e < 1$ мкА. Шкала энергии E_e корректировалась по измерениям E_e методом задерживающего потенциала. Ток I^- регистрировался коллектором типа цилиндра Фарадея, который был установлен на оси пучка. Молекулы C_{60} двигались в пучке с энергией ~ 0.1 эВ. Поэтому вытяжка и разделение (при энергии $E_e > 7.6$ эВ — потенциала ионизации фуллеренов) ионов осуществлялись слабым электрическим полем.

Пучок фуллеренов получали с помощью эффузионного источника, в который засыпались смесь C_{60}/C_{70} , любезно предоставленная нам авторами работы [7]. Получение данных образцов C_{60}/C_{70} описано в [7]. Мы использовали данные по плотности насыщенных паров C_{60}/C_{70} из [8]. По нашей оценке, точность измерения σ^- не хуже 30%. В основном она определяется точностью измерения плотности насыщенных паров образцов фуллеренов. Содержание молекул C_{70} в исследованных образцах не превышало 25%, а в пучке $\leq 10\%$. Это уменьшение обусловлено более низким парциальным давлением C_{70} [8]. Поэтому можно считать, что полученные нами сечения σ^- относятся к молекуле C_{60} . Приведенная ниже зависимость $\sigma^- (E_e)$ получена при температуре образца в эффузионном источнике $T_0 = 744 \pm 0.5$ К. Аналогичные зависимости были получены при других значениях T_0 в диапазоне от 670 до 800 К.

3. На рис. 1 показаны зависимости сечения прилипания σ^- от E_e . Кривые 1, 2 и 3 были получены при различной величине вытягивающего анионы напряжения, что соответствовало разному времени их движения до коллектора τ .

На рис. 2 результаты настоящей работы (кривая 1) сравниваются с ионными токами для C_{60}^- из [4] (кривая 2) и [5] (кривая 3). Авторы [5] не указали возможные причины различий между своими кривыми 2 и 3, нам сделать это еще труднее. Низкая интенсивность первого пика на кривых 2 и 3, возможно, связана с тем, что авторам [4,5] не удалось корректно пронормировать ток анионов C_{60}^- на ток электронов вблизи нуля E_e , так как для вытяжки ионов в масс-спектрометр накладывалось электрическое поле.

Абсолютная величина σ^- в первом максимуме оказалась выше геометрического сечения молекулы C_{60} , $\sigma_0 \approx \approx 40 \text{ \AA}^2$. Мы объясняем это, как и ранее для молекулярных кластеров [9], поляризационным захватом электрона. Возможные механизмы прилипания электрона к C_{60} обсуждались в [4,5]. При $E_e \sim 0$ эВ анион C_{60}^- образуется в основном электронном состоянии, которому соответствует

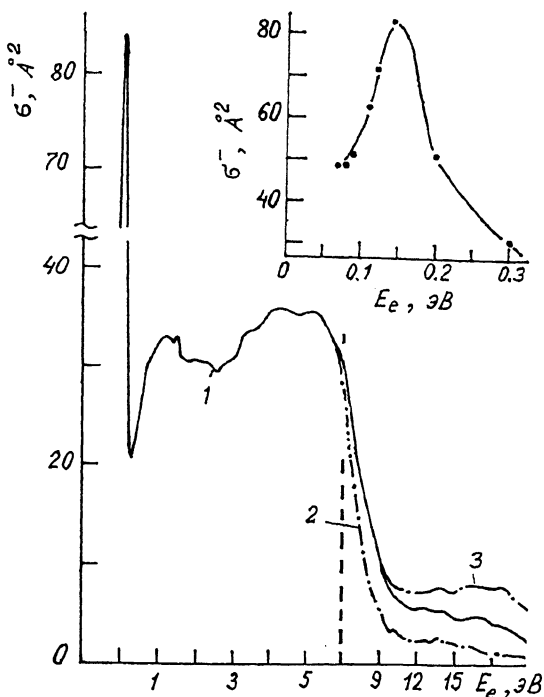


Рис. 1. Сечение прилипания электрона. 1 — τ — 60 мкс, 2 — 100 мкс, 3 — 40 мкс.

колебательно-возбужденный фешбаховский резонанс. При более высокой энергии E_e прилипление происходит по механизму электронно-возбужденного фешбаховского резонанса. Мы, как и ранее в случае молекулярных кластеров [9–10], считаем, что захват электрона в основное состояние может происходить также и при $E_e > 0$ эВ из-за эффективной термализации электрона в молекуле фуллерена.

Как видно на вставке на рис. 1, максимум сечения $\sigma^-(E_e)$ реализуется при $E_e = 0.15$ эВ. Это означает, что существует потенциальный барьер для захвата электрона молекулой C_{60} . Этот вывод согласуется с [2,5]. В экспериментах данной работы электроны коллимировались продольным магнитным полем (~ 300 Гс), это могло увеличивать их реальную энергию на ~ 0.1 эВ за счет наличия поперечной составляющей вектора скорости. Поэтому мы можем утверждать, что величина барьера для захвата электрона в основное состояние аниона C_{60}^- , по крайней мере, не менее 0.15 эВ.

Расслоение кривых 1–3 на рис. 1 объясняется тем, что время жизни аниона C_{60}^- , образующегося при $E_e > 6$ эВ,

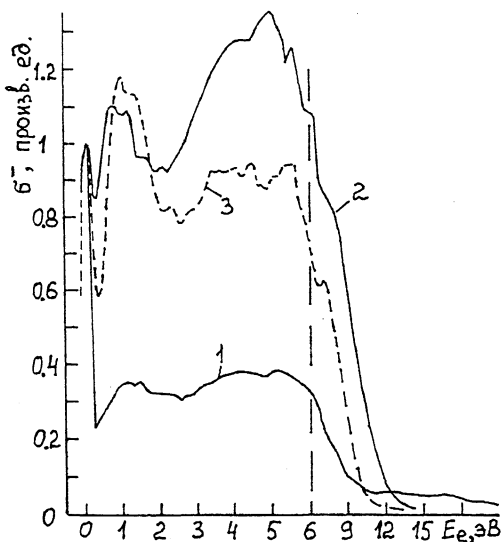


Рис. 2. Сравнение кривых эффективности прилипания. 1 — настоящая работа, 2 — [4], 3 — [5].

становится сравнимым с временем регистрации ионов. Аналогичный эффект наблюдали также в [5]. Увеличение вероятности автоотрыва электрона с ростом E_e , по-видимому, связано с увеличением запаса полной внутренней энергии аниона C_{60}^- , $\varepsilon = \varepsilon_0(T_0) + E_e$. При $T_0 = 744$ К в 174 колебательных степенях свободы молекулы C_{60} запас энергии $\varepsilon_0 \sim 10$ эВ, что соизмеримо с энергией электрона. Поэтому можно предположить, что время жизни C_{60}^- , τ_* , зависит и от температуры T_0 . Тогда зависимость $\tau_*(T_0)$ может быть использована для определения энергии ε_0 .

Работа выполнена при поддержке Международного научного фонда (грант NR 3000) и Российского фонда фундаментальных исследований (проект 95-02-05317а).

Список литературы

- [1] Krätshmer W., Lamb L.D., Fostiropoulos K., Huffman D.R. // Nature. 1990. V. 347. P. 354-357.
- [2] Smith D., Spanel P., Märk T.D. // Chem. Phys. Lett. 1993. V. 213. N 1-2. P. 202-206.
- [3] Spanel P., Smith D. // Chem. Phys. Lett. 1991. V. 229. N 3. P. 262-266.
- [4] Lezius M., Scheier P., Märk N.D. // Chem. Phys. Lett. 1993. V. 203. N 2-3. P. 232-236.
- [5] Jaffke T., Pllenberger E., Lezius N., Matejcik S., Smith D., Märk T.D. // Chem. Phys. Lett. 1994. V. 226. N 1-2. P. 213-218.

- [6] *Востриков А.А., Предтеченский М.Р.* // ЖТФ. 1985. Т. 55. В. 5. С. 887-896.
- [7] *Maltsev V.A., Nerushev O.A., Novopashin S.A., Selivanov B.A.* // Chem. Phys. Lett. 1993. V. 212. N 5. P. 480-482.
- [8] *Sai Baba M., Lakshmi Narasimhan T.S., Balasubramanian R. et al.* // J. Phys. Chem. 1994. V. 98. N 4. P. 1333-1340.
- [9] *Востриков А.А., Дубов Д.Ю., Предтеченский М.Р.* // ЖТФ. 1987. Т. 57. В. 4. С. 760-770.
- [10] *Востриков А.А., Самойлов И.В.* // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. В. 7. С. 58-62.

Институт теплофизики
СО РАН
Новосибирск

Поступило в Редакцию
6 апреля 1995 г.
