

УДК 53.09

**ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ, ОПИСЫВАЮЩАЯ РОСТ ОДНОСЛОЙНЫХ
УГЛЕРОДНЫХ НАНОТРУБОК В ПЛАЗМЕ****Г.П. Бурмака^{*}, И.Б. Денисенко^{**}, Н.А. Азаренков^{**}, Р.А. Трофименко^{**}***^{*}Факультет компьютерных наук, Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина
пл. Свободы 4, Харьков 61022, Украина**^{**} Физико-технический факультет, Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина
пл. Свободы, 4, Харьков 61022, Украина**E-mail: idenysenko@yahoo.com**Поступила в редакцию 11 мая 2011г.*

Разработана диффузионная модель, описывающая рост леса однослойных углеродных нанотрубок при плазмохимическом осаждении из газовой фазы. С помощью этой модели определены скорость роста нанотрубок, диффузионная длина и среднее время пребывания атомов углерода на поверхности нанотрубок как функции внешних параметров. Модель учитывает неоднородность осаждения нейтральных частиц из разрядной камеры на поверхность нанотрубок, взаимодействие молекул углеводорода и атомов углерода с травящим газом, термическую и ион-индуцированную диссоциацию адсорбированных на поверхности нанотрубок молекул углеводорода, распад на поверхности ионов углеводорода, а также диффузию атомов углерода по поверхности нанотрубок.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: углеродные нанотрубки, скорость роста, плазмохимическое осаждение.**THEORETICAL MODEL DESCRIBING GROWTH OF SINGLE-WALLED CARBON NANOTUBES IN PLASMA****G.P. Burmaka^{*}, I.B. Denysenko^{**}, N.A. Azarenkov^{**}, R.O. Trofymenko^{**}***^{*} Department of Computer Sciences, V.N. Karazin Kharkiv National University
Svobody sq. 4, 61022 Kharkiv, Ukraine**^{**} Department of Physics and Technology, V.N. Karazin Kharkiv National University
Svobody sq. 4, 61022 Kharkiv, Ukraine*

The surface diffusion model is developed, which describes the growth of forest of single-walled carbon nanotubes in plasma-enhanced chemical vapor deposition. Using the model, the growth rate of nanotubes, diffusion length and residence time of carbon atoms on nanotube surfaces are determined, as functions of external parameters. The model accounts for nonuniformity in deposition of neutral particles on surface of nanotubes from discharge chamber, interactions of hydrocarbon molecules and carbon atoms with etching gas, thermal and ion-induced dissociation of hydrocarbon molecules adsorbed on surface of nanotubes, decomposition of hydrocarbon ions on nanotube surface, as well as diffusion of carbon atoms on surface of nanotubes.

KEY WORDS: carbon nanotubes, growth rate, plasma-enhanced chemical deposition.**ТЕОРЕТИЧНА МОДЕЛЬ, ЩО ОПИСУЄ РІСТ ОДНОШАРОВИХ ВУГЛЕЦЕВИХ НАНОТРУБОК У ПЛАЗМІ****Г.П. Бурмака^{*}, І.Б. Денисенко^{**}, Н.А. Азаренков^{**}, Р.О. Трофименко^{**}***^{*} Факультет комп'ютерних наук, Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна
м. Свободи 4, Харків 61022, Україна**^{**} Фізико-технічний факультет, Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна
м. Свободи 4, Харків 61022, Україна*

Розроблено дифузійну модель, яка описує ріст лісу одношарових вуглецевих нанотрубок при плазмохімічному осадженні з газової фази. За допомогою цієї моделі визначено швидкість росту нанотрубок, дифузійну довжину та середній час перебування атомів вуглецю на поверхні нанотрубок як функцію зовнішніх параметрів. Модель враховує неоднорідність осадження нейтральних частинок із розрядної камери на поверхню нанотрубок, взаємодію молекул вуглеводню та атомів вуглецю з травлячим газом, термічну та іон-індуковану дисоціацію адсорбованих на поверхні нанотрубок молекул вуглеводню, розпад на поверхні іонів вуглеводню, а також дифузію атомів вуглецю по поверхні нанотрубок.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: вуглецеві нанотрубки, швидкість росту, плазмохімічне осадження.

Углеродные нанотрубки интенсивно исследуются на протяжении последнего десятилетия из-за возможности их эффективного использования при конструировании электронных эмиттеров, создании композиционных материалов с уникальными физическими и химическими свойствами, биосенсоров и многих других устройств для научных целей, промышленности и медицины [1-3]. Для роста прямых углеродных нанотрубок в последние годы широко применяется метод плазмохимического осаждения из газовой фазы [4,5].

Нанотрубки, синтезированные с использованием плазмы, как правило, более прямые, растут при более низкой температуре поверхности, на которой они формируются, и имеют большие скорости роста, чем те же структуры, выращенные без использования плазмы [4,6]. Кроме того, на поверхность нанотрубок могут быть нанесены различные материалы в тех же плазменных реакторах, где они были выращены, что необходимо для создания разнообразных устройств. Рост нанотрубок в плазменных реакторах обычно происходит при наличии на подложке, на которой формируются эти наноструктуры, наночастиц-катализаторов. Во время роста однослойных углеродных нанотрубок частицы-катализаторы либо прочно связаны с поверхностью подложки,

или эта связь является слабой и наночастицы-катализаторы находятся на вершине нанотрубок [7-10]. Свойства нанотрубок сильно зависят от параметров плазмы, сорта рабочего газа и свойств катализатора. В настоящее время вопрос о влиянии плазмы на рост углеродных наноструктур недостаточно изучен.

Одним из слабоизученных вопросов в этой области является вопрос о росте леса однослойных углеродных нанотрубок, когда частица-катализатор остается прикрепленной к подложке и при этом длина нанотрубок превышает несколько микрометров. В отсутствие плазмы и больших длинах леса нанотрубок поток нейтральных углеродсодержащих частиц на поверхность нанотрубок уменьшается с расстоянием от их вершины, и доставка атомов углерода («строительного материала нанотрубок») к частицам-катализаторам на подложке может осуществляться только за счет диффузии атомов углерода по поверхности нанотрубок [11]. Было обнаружено, что при росте однослойных нанотрубок в присутствии плазмы углерод к частицам-катализаторам может эффективно доставляться углеродсодержащими ионами плазмы [12,13]. Однако, в работах [12,13], где исследовался рост углеродных нанотрубок численными методами, не учитывались такие важные процессы на поверхности нанотрубок, как термическая и ион-индуцированная диссоциация углеродсодержащих нейтральных частиц на поверхности нанотрубок и взаимодействие травящего газа с адсорбированными частицами на поверхности. Влияние вышеуказанных процессов на рост однослойных углеродных нанотрубок изучалось в работе [14], но при этом рассматривался только случай, когда ионы и нейтральные частицы оседают равномерно на поверхность нанотрубок.

В данной работе исследуется случай, когда частицы-катализаторы прикреплены к подложке и нейтральные частицы из разрядной камеры осаждаются только вблизи верхушки однослойных углеродных нанотрубок, а ионы из плазмы бомбардируют их поверхность равномерно. Целью работы является разработка теоретической модели для определения скорости роста леса однослойных углеродных нанотрубок, которая учитывает взаимодействие молекул углеводорода и атомов углерода с травящим газом, термическую и ион-индуцированную диссоциацию адсорбированных на поверхности нанотрубок молекул углеводорода, распад на поверхности ионов углеводорода, а также диффузию атомов углерода по поверхности нанотрубок.

ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ РОСТА НАНОТРУБОК

Основные предположения, используемые в модели

Рассмотрим рост леса однослойных углеродных нанотрубок с полусферической вершиной (рис. 1). Нанотрубки базируются на частичках-катализаторах, которые находятся на подложке, на расстоянии L_{NT} от вершин нанотрубок. Газоразрядная плазма (например, создаваемая в смеси C_2H_2 и H_2) расположена над нанотрубками и служит источником различных углерод- и водород-содержащих нейтральных частиц и ионов. В модели учитывается взаимодействие с нанотрубками молекул углеводорода C_2H_2 , ионов углеводорода $C_2H_2^+$ и атомов или молекул травящего газа (в данном случае атомов водорода). Предполагается, что лес нанотрубок довольно густой (расстояние между нанотрубками меньше или порядка микрометра). В этом случае поток нейтральных частиц из разрядной камеры на поверхность нанотрубок экспоненциально уменьшается с увеличением расстояния от вершин нанотрубок [11].

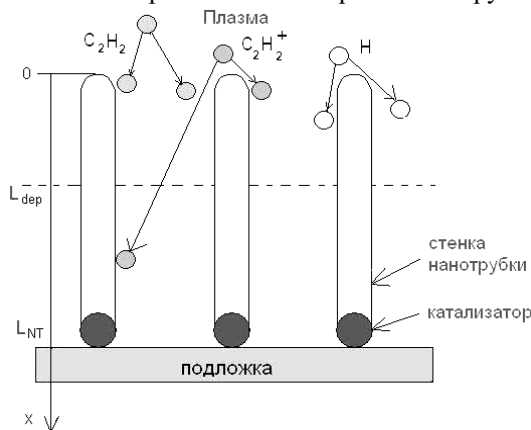


Рис 1. Схематический рисунок осадки частиц на поверхность нанотрубки.

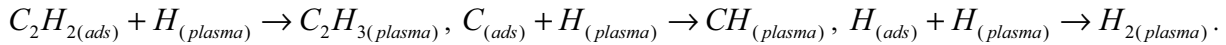
С целью упрощения в модели полагается, что молекулы C_2H_2 и атомы H в области $0 < x < L_{dep}$ осаждаются равномерно на поверхность нанотрубок, а в области $x > L_{dep}$ их поток на поверхность нанотрубок равен нулю. Ионы $C_2H_2^+$ осаждаются равномерно на всю поверхность нанотрубок.

На поверхности нанотрубок происходят реакции адсорбции и десорбции молекул углеводорода и атомов травящего газа. Потоки адсорбированных и десорбированных частиц равны $j_{cads} = j_\alpha(1 - \theta_i)$ и $j_{ades} = \theta_\alpha v_0 \nu \exp(-E_a / k_B T_s)$, где $\alpha = CH$ и H обозначают частицы C_2H_2 и H_2 соответственно. $j_\alpha = \tilde{n}_\alpha v_{th\alpha} / 4$ - плотность потока нейтральных частиц, $v_{th\alpha} = \sqrt{8k_B T_s / \pi m_\alpha}$ - средняя тепловая скорость частиц, k_B - постоянная Больцмана, E_a

$\sim 1,8$ эВ [14] - пороговая энергия адсорбции, \tilde{n}_α , θ_α и m_α - объемная плотность, плотность покрытия поверхности и масса частиц сорта α . Предполагается, что на боковой поверхности нанотрубок находятся молекулы C_2H_2 , атомы H и C , и суммарная плотность покрытия $\theta_i = \theta_{CH} + \theta_H + \theta_C$, где θ_C - плотность

покрытия поверхности атомами углерода, $\nu_0 \sim 1,3 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$ - число ячеек на единичной площади, где возможна адсорбция частиц, $\nu \sim 10^{13} \text{ Гц}$ - частота тепловых колебаний и T_s - температура поверхности нанотрубок.

Адсорбированные на поверхности частицы могут взаимодействовать с падающими на нанотрубки атомами водорода, в результате чего образуются летучие продукты:



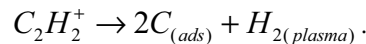
Потеря частиц с единицы поверхности в единицу времени в результате их взаимодействия с водородом определяется как $j_{\text{reac}} = \theta_\alpha \nu_0 \sigma_{\text{ads}} j_H$, где $\sigma_{\text{ads}} \sim 6,8 \times 10^{-16} \text{ см}^2$ - поперечное сечение, описывающее взаимодействие атомов водорода с адсорбированными на поверхности частицами.

Атомы углерода могут появиться на поверхности нанотрубок в результате следующих реакций:

- 1) термической диссоциации,
- 2) ионной бомбардировки адсорбированных C_2H_2 молекул,
- 3) распада $C_2H_2^+$ ионов.

Прирост атомов углерода на единице поверхности в единицу времени в результате термической диссоциации может быть оценен как $2\theta_{CH} \nu_0 \nu \exp(-\delta E_i / k_B T_s)$, где $\delta E_i \sim 2,1 \text{ эВ}$ - пороговая энергия термической диссоциации.

Предполагается, что энергия ионов E_i достаточно велика ($E_i \geq 2,1 \text{ эВ}$), чтобы разрушить связь в C_2H_2 молекулах на поверхности нанотрубок, и прирост атомов углерода на единице поверхности в единицу времени из-за бомбардировки молекул углеводорода ионами равен $2\theta_{CH} j_i \gamma_d$, где $\gamma_d = E_i / \delta E_i$, $j_i \sim n_i \sqrt{T_e / m_i}$ - поток ионов на поверхность нанотрубок, $T_e \sim 1,5 \text{ эВ}$ - температура электронов в плазме, n_i и m_i - плотность ионов и их масса соответственно. Бомбардируя поверхность углеродных нанотрубок, ионы распадаются на атомы углерода, которые остаются на их поверхности, и молекулярный водород, который улетучивается в плазму:



Атомы углерода, появляющиеся на поверхности нанотрубок в результате термической диссоциации и ионной бомбардировки, диффундируют по поверхности нанотрубок к частичкам-катализаторам, расположенным при $x = L_{NT}$ на границе нанотрубок с подложкой, и внедряются в структуру нанотрубок [15,16-20]. Диффузия атомов углерода по поверхности нанотрубок характеризуется коэффициентом $D_s = a_0^2 \nu \exp(-\delta E_d / k_B T_s)$, где $a_0 \approx 0,14 \text{ нм}$ - межатомное расстояние в нанотрубке, δE_d - пороговая энергия поверхностной диффузии.

Основные уравнения модели

Учитывая вышесказанное в предыдущем подразделе, уравнения баланса частиц (молекул ацетилена, атомов водорода и атомов углерода) на поверхности нанотрубок могут быть представлены в следующем виде:

- 1) для области, расположенной при $x < L_{\text{dep}}$:

$$j_{CH} (1 - \theta_i) - \theta_{CH} L = 0, \quad (1)$$

$$j_H (1 - \theta_i) + 2\theta_{CH} M - \theta_H K = 0, \quad (2)$$

$$D_s \frac{d^2 n_C}{dx^2} + 2n_{CH} \nu \exp\left(-\frac{\delta E_i}{k_B T_s}\right) + 2\theta_{CH} j_i \gamma_d + 2j_i - n_C \nu \exp\left(-\frac{\delta E_{ev}}{k_B T_s}\right) - n_C \sigma_{\text{ads}} j_H = 0; \quad (3)$$

- 2) для области, расположенной при $x > L_{\text{dep}}$:

$$D_s \frac{d^2 n_C}{dx^2} - n_C \nu \exp\left(-\frac{\delta E_{ev}}{k_B T_s}\right) + 2j_i = 0, \quad (4)$$

где $n_\alpha = \theta_\alpha \nu_0$ - поверхностная концентрация частиц сорта α (C_2H_2 , H и C), δE_{ev} - пороговая энергия испарения атомов углерода с поверхности нанотрубок,

$$L = \nu_0 \nu \exp\left(-\frac{E_a}{k_B T_s}\right) + \nu_0 \nu \exp\left(-\frac{\delta E_i}{k_B T_s}\right) + \nu_0 \sigma_{ads} j_H + j_i \gamma_d, \quad M = \nu_0 \nu \exp\left(-\frac{E_a}{k_B T_s}\right),$$

$$K = \nu_0 \nu \exp\left(-\frac{E_a}{k_B T_s}\right) + \nu_0 \sigma_{ads} j_H.$$

Из уравнений (1) и (2) получим выражения для степеней покрытия поверхности нанотрубок водородом

$$\theta_H = \frac{\theta_{CH}}{K} \left(2M + \frac{L j_H}{j_{CH}}\right) \quad (5)$$

и молекулами углеводорода

$$\theta_{CH} = (1 - \theta_C) \left/ \left[1 + \frac{2M + L j_H / j_{CH}}{K} + \frac{L}{j_{CH}} \right] \right. \quad (6)$$

Подстановка полученного соотношения (6) в уравнение (3) приводит к дифференциальному уравнению

$$D_s \frac{d^2 n_C}{dx^2} + Q_C - \frac{n_C}{\tau_a} = 0, \quad (7)$$

где $Q_C = 2(C_1 + j_i)$ - эффективный поток атомов углерода на поверхность однослойных нанотрубок,

$$C_1 = \left[\nu_0 \nu \exp\left(-\frac{\delta E_i}{k_B T_s}\right) + j_i \gamma_d \right] \left/ \left[1 + \frac{2M + L j_H / j_{CH}}{K} + \frac{L}{j_{CH}} \right] \right.$$

и $\tau_a = \left(\nu \exp\left(-\frac{E_{ev}}{k_B T_s}\right) + \sigma_{ads} j_H + \frac{2C_1}{\nu_0} \right)^{-1}$ - характерное время пребывания атомов углерода на участке поверхности однослойной углеродной нанотрубки, расположенной при $x < L_{dep}$.

Уравнение (4) может быть представлено в виде

$$D_s \frac{d^2 n_C^*}{dx^2} + 2j_i - \frac{n_C^*}{\tau_a^*} = 0, \quad (8)$$

где $\tau_a^* = \nu^{-1} \exp(E_{ev} / k_B T_s)$ - характерное время пребывания атомов углерода на участке поверхности однослойной углеродной нанотрубки, расположенной при $x > L_{dep}$.

n_C^* - поверхностная концентрация атомов углерода в этой области.

Выражения для концентраций атомов углерода на участках $x < L_{dep}$ и $x > L_{dep}$ будем искать в виде:

$$n_C = A_1 \exp(-x / \lambda_D) + A_2 \exp(x / \lambda_D) + Q_C \tau_a,$$

$$n_C^* = A_3 \exp(-x / \lambda_D^*) + A_4 \exp(x / \lambda_D^*) + 2j_i \tau_a^*,$$

где A_1, A_2, A_3, A_4 - постоянные. $\lambda_D = \sqrt{D_s \tau_a}$ и $\lambda_D^* = \sqrt{D_s \tau_a^*}$ - длины поверхностной диффузии при $x < L_{dep}$ и $x > L_{dep}$ соответственно.

Для нахождения концентраций n_C и n_C^* как функций координаты x воспользуемся следующими граничными условиями:

- 1) поток атомов углерода при $x \leq 0$ отсутствует;
- 2) поверхностная концентрация атомов углерода на границе $x = L_{dep}$ непрерывна;
- 3) поток атомов углерода по поверхности нанотрубки при $x = L_{dep}$ непрерывен;
- 4) вблизи катализатора диффузионный поток атомов углерода пропорционален поверхностной концентрации атомов углерода.

Следовательно, получаем такую систему граничных условий:

$$\begin{cases} \left. \frac{dn_C}{dx} \right|_{x=0} = 0, \\ n_C(x = L_{dep}) = n_C^*(x = L_{dep}), \\ \left. \frac{dn_C}{dx} \right|_{x=L_{dep}} = \left. \frac{dn_C^*}{dx} \right|_{x=L_{dep}}, \\ -D_s \left. \frac{dn_C^*}{dx} \right|_{x=L_{NT}} = kn_C^*(x = L_{NT}), \end{cases}$$

где $k = a_0 \nu \exp\left(-\frac{\delta E_{inc}}{k_B T_s}\right)$ – коэффициент, характеризующий встраивание атомов углерода в стенку однослойной углеродной нанотрубки и δE_{inc} – энергетический барьер для этого процесса. Предполагается, что энергетический барьер для диффузии углерода по поверхности однослойной углеродной нанотрубки больше, чем на границе углерод – катализатор, поэтому $\delta E_{inc} \approx \delta E_d$ [11].

Учитывая указанные выше граничные условия, получим следующее выражение для скорости роста леса однослойных углеродных нанотрубок:

$$V_{NT} = \frac{dL_{NT}}{dt} = -\Omega D_s \left. \frac{dn_C^*}{dx} \right|_{x=L_{NT}} = \frac{2k\Omega \left\{ Q_C \tau_a sh(L_{dep}/\lambda_D) + 2j_i \tau_a^* \frac{\lambda_D}{\lambda_D^*} sh(\Delta L/\lambda_D^*) ch(L_{dep}/\lambda_D) + 2j_i \tau_a^* sh\left(\frac{L_{dep}}{\lambda_D}\right) \left[ch(\Delta L/\lambda_D^*) - 1 \right] \right\}}{\mu C \exp(\Delta L/\lambda_D^*) + \eta D \exp(-\Delta L/\lambda_D^*)}, \quad (9)$$

где Ω – площадь, приходящаяся на один атом углерода в стенке однослойной углеродной нанотрубки,

$$C = sh(L_{dep}/\lambda_D) + \frac{\lambda_D}{\lambda_D^*} ch(L_{dep}/\lambda_D), \quad D = sh(L_{dep}/\lambda_D) - \frac{\lambda_D}{\lambda_D^*} ch(L_{dep}/\lambda_D), \quad \mu = 1 + \frac{k\lambda_D^*}{D_s}, \quad \eta = 1 - \frac{k\lambda_D^*}{D_s},$$

$$\Delta L = L_{NT} - L_{dep}.$$

Уравнение (9) может быть упрощено в некоторых предельных случаях.

1) Например, в случае $\Delta L = 0$, т.е. когда $L_{NT} = L_{dep}$, формула для скорости роста нанотрубок приобретает следующий вид:

$$V_{NT} = \frac{k\Omega Q_C \tau_a sh(L_{dep}/\lambda_D)}{sh(L_{dep}/\lambda_D) + \frac{k\lambda_D}{D_s} ch(L_{dep}/\lambda_D)}.$$

2) Когда расстояние ΔL значительно меньше, чем длина поверхностной диффузии ($\Delta L/\lambda_D^* \ll 1$), то выражение для скорости роста нанотрубок может быть упрощено, используя разложение в ряд Тейлора, и оно может быть представлено в виде:

$$V_{NT} \approx \frac{k\Omega \left\{ Q_C \tau_a sh(L_{dep}/\lambda_D) + 2j_i \tau_a^* \frac{\Delta L}{\lambda_D^*} \frac{\lambda_D}{\lambda_D^*} ch(L_{dep}/\lambda_D) \right\}}{\left(1 + \frac{k\Delta L}{D_s}\right) sh(L_{dep}/\lambda_D) + \frac{\lambda_D}{\lambda_D^*} \left(\frac{k\lambda_D^*}{D_s} + \frac{\Delta L}{\lambda_D^*}\right) ch(L_{dep}/\lambda_D)}$$

3) При $L_{dep}/\lambda_D \gg 1$ выражение (9) также может быть заменено более простым выражением:

$$V_{NT} = \frac{k\Omega \left\{ Q_C \tau_a + 2j_i \tau_a^* \frac{\lambda_D}{\lambda_D^*} sh(\Delta L/\lambda_D^*) + 2j_i \tau_a^* (ch(\Delta L/\lambda_D^*) - 1) \right\}}{\left(1 + \frac{k\lambda_D}{D_s}\right) ch(\Delta L/\lambda_D^*) + \left(\frac{k\lambda_D^*}{D_s} + \frac{\lambda_D}{\lambda_D^*}\right) sh(\Delta L/\lambda_D^*)}$$

4) Если $L_{dep}/\lambda_D \gg 1$ и $\Delta L/\lambda_D^* \gg 1$, то из выражения (9) получаем, что:

$$V_{NT} = \frac{2k\Omega j_i \tau_a^*}{1 + \frac{k\lambda_D^*}{D_s}}.$$

Из последнего выражения следует, что при больших длинах нанотрубок скорость их роста не зависит от их длины.

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

Используя аналитические выражения, представленные в предыдущем разделе, исследуем как скорость роста леса нанотрубок, диффузионная длина и время, характеризующие пребывание атомов углерода на поверхности нанотрубок, зависят от длины нанотрубок, температуры их поверхности и плотности ионов плазмы.

На рис. 2 показаны скорости роста нанотрубок как функции её длины для разных температур поверхности

нанотрубок и трех значений n_i . Расчеты были проведены для $L_{dep}=1$ мкм. Из рис. 2 видно, что при температурах выше 800 К скорость роста нанотрубок падает при достижении нанотрубками длины L_{dep} , а при $T_s \leq 700$ К она растет.

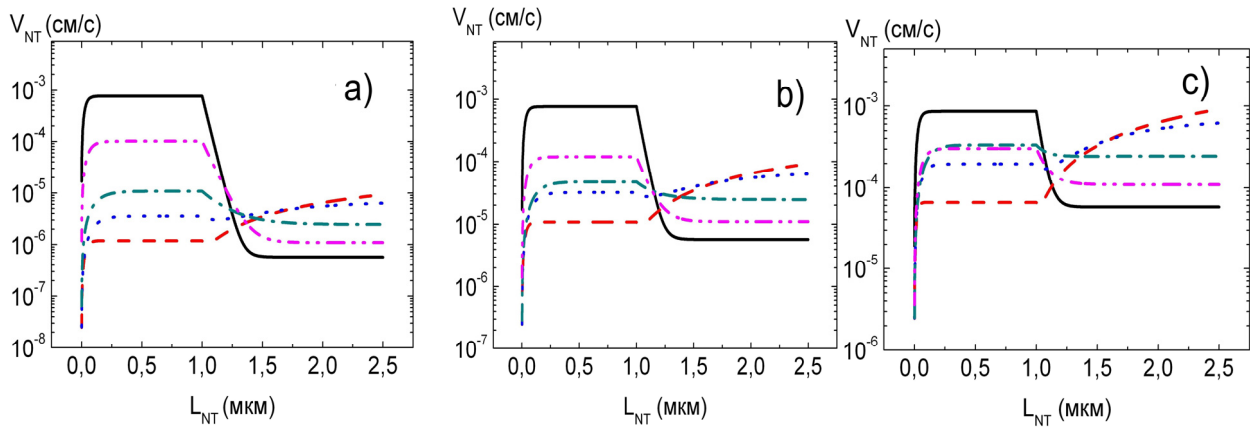


Рис.2. Скорости роста леса нанотрубок как функции их длины при концентрациях ионов: 10^9 см^{-3} (а), 10^{10} см^{-3} (б), 10^{11} см^{-3} (с) при различных температурах поверхности нанотрубок: 600 К (пунктирная линия), 700 К (точечная линия), 800 К (штрихпунктирная линия), 900 К (двойная штрихпунктирная линия) и 1000 К (сплошная линия).

Уменьшение скорости роста нанотрубок при $L > L_{dep}$ и $T_s \geq 800$ К объясняется тем, что при достаточно высоких температурах эффективный поток атомов углерода на поверхность, расположенную при $x > L_{dep}$, значительно меньше потока на поверхность, находящуюся в области $x < L_{dep}$. При относительно низких температурах ($T_s \leq 700$ К) время пребывания углерода на поверхностях нанотрубок в области $x > L_{dep}$ значительно больше, чем в области $x < L_{dep}$ (рис. 3б). Это и приводит к увеличению скорости роста нанотрубок с увеличением их длины при низких температурах.

С увеличением концентрации ионов генерация атомов углерода на поверхности нанотрубок в иониндуцированных процессах интенсифицируется, что может привести к увеличению скорости роста нанотрубок (рис. 2).

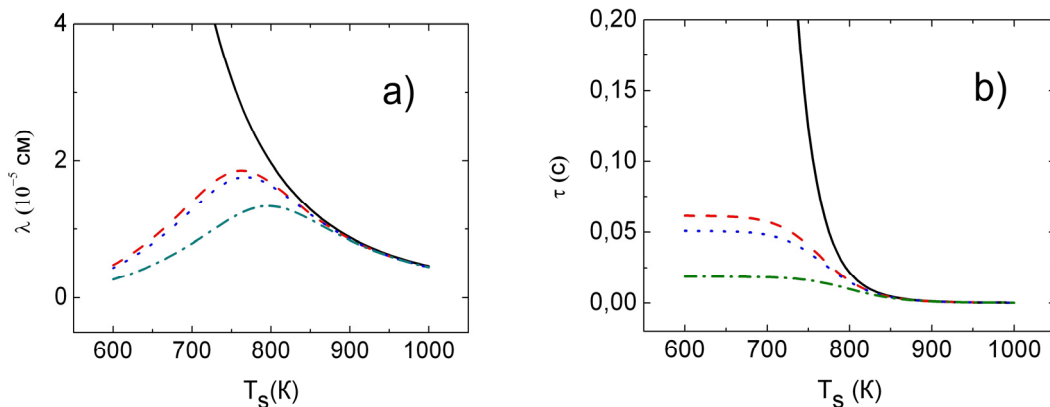


Рис.3. Диффузионные длины нанотрубок (а) и характерное время пребывания атомов углерода на поверхности углеродной нанотрубки (б) в области $x < L_{dep}$, как функции температуры при различных концентрациях ионов: 10^9 см^{-3} (штрихпунктирные линии), 10^{10} см^{-3} (точечные линии), 10^{11} см^{-3} (пунктирные линии). Сплошные линии на рис. 3 (а) и рис. 3 (б) соответствуют λ и τ при $x > L_{dep}$.

Нами также были получены зависимости диффузионной длины (рис. 3а) и характерного времени пребывания атомов углерода на поверхностях однослойных углеродных нанотрубок (рис. 3б) от температуры T_s . Из рис. 3б видно, что при низких температурах ($T_s < 700$ К) время пребывания атомов углерода на поверхностях нанотрубок слабо зависит от температуры поверхностей нанотрубок, так как потеря и образование атомов углерода в этом температурном диапазоне происходит в основном за счет осаждения ионов углеводорода и атомов водорода. При низких температурах длина поверхностной диффузии возрастает с увеличением температуры T_s за счет увеличения коэффициента диффузии.

ВЫВОДЫ

В данной работе разработана диффузионная модель, описывающая рост леса однослойных углеродных нанотрубок методом плазмохимического осаждения из газовой фазы. В этой модели роста нанотрубок учтены следующие процессы на поверхности нанотрубок: распад ионов углеводорода, испарение атомов углерода и их диффузия по поверхности нанотрубок. Учтены также адсорбция и десорбция молекул углеводорода, их термическая диссоциация и диссоциация, вызванная ионной бомбардировкой. Показано, что скорость роста леса нанотрубок зависит от температуры их поверхности, концентрации ионов в плазменном окружении, а также от длины нанотрубок.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Helveg S., Lopes-Cartes C., Sehested J., Hansen P. L., Clausen B. S., Rostrup-Nielsen J. R., Abild-Pedersen F., Nørskov J. K. Atomic-scale imaging of carbon nanofibre growth // *Nature*.- 2004.- Vol. 427.- P. 426-249.
2. Carbon Nanotubes: Science and Applications (Ed. Meeyappan M.). - Boca Raton: CRC Press .- 2004. - 304 p.
3. Ostrikov K. Reactive plasmas as a versatile nanofabrication tool // *Rev. Mod. Phys.*- 2005.- Vol. 77.- P.489-511.
4. Melechko A.V., Desikan R., McKnight T.E., Klein K.L., Rack P.D. Synthesis of vertically aligned carbon nanofibres for interfacing with live systems // *J.Phys. D: Appl. Phys.*- 2009.- Vol.42.- P.193001.
5. Vizireanu S., Stoica S.D., Luculescu C., Nistor L.C., Mitu B., Dinescu G. Plasma techniques for nanostructured carbon material synthesis. A case study: carbon nanowall growth by low pressure expanding RF plasma // *Plasma Sources Sci. Technol.*- 2010.- Vol.19.- P. 034016.
6. Meeyappan M. A review of plasma-enhanced chemical vapor deposition of carbon nanotubes // *J.Phys. D: Appl. Phys.*- 2009.- Vol. 42.- P. 213001.
7. Keidar M., Waas A. M., Raitsev Y., Waldorff E. Modeling of the Anodic Arc Discharge and Conditions for Single-Wall Carbon Nanotube Growth // *J. Nanosci. Nanotechnol.*- 2006.- Vol. 6.- P.1309-1314.
8. Hofmann S. et al. In situ Observations of Catalyst Dynamic during Surface-Bound Carbon Nanotube Nucleation // *Nano Lett.*- 2007.- Vol. 7.- P. 602-608.
9. Reich S., Li L., Robertson J. Control the chirality of carbon nanotubes by epitaxial growth // *Chem. Phys. Lett.*- Vol. 421.- P. 469-472.
10. Chhowalla M. et al. Growth process conditions of vertically aligned carbon nanotubes using plasma enhanced chemical vapor deposition// *J. Appl. Phys.*- 2001.- Vol. 90.- P. 5308 - 5317.
11. Louchev O.A., Laude T., Sato Y., Kanda H. Diffusion-controlled kinetics of carbon nanotube forest growth by chemical vapor deposition // *J. Chem. Phys.*- 2003.- Vol.188.- P. 7622.
12. Levchenko I., Ostrikov K., Tam E. Uniformity of postprocessing of dense nanotube arrays by neutral and ion fluxes // *Appl. Phys. Lett.*- 2006.- Vol. 89.- P.223108.
13. Tam E., Levchenko I., Ostrikov K. Deterministic shape control in plasma-aided nanotip assembly // *J. Appl. Phys.*- 2006.- Vol.100.- P. 036104 - 036104-3.
14. Denysenko I., Ostrikov K., Yu M. Y., Azarenkov N. A. Effects of ions and atomic hydrogen in plasma-assisted growth of single-walled carbon nanotubes // *J. Appl. Phys.*- 2007.- Vol. 102.- P.074308.
15. Lee Y. H., Kim S. G., Tomanek D. Catalyst growth of single-wall carbon nanotubes: an ab initio studio // *Phys. Rev. Lett.*- 1997.- Vol. 78.- P. 2393-2396.
16. Krashennnikov A. V., Nordlund K., Lehtinen P. O., Foster A. S., Ayuela A., Nieminen R. M. Adsorption and migration of carbon adatoms on carbon nanotubes: Density-functional ab initio and tight-binding studies // *Phys. Rev. B.*- 2004.- Vol. 69.- P. 073402.
17. Krashennnikov A. V., Nordlund K., Lehtinen P. O., Foster A. S., Ayuela A., Nieminen R. M. Adsorption and migration of carbon adatoms on zigzag carbon nanotubes // *Carbon.*- 2004.- Vol. 42.- P.1021.
18. Kwon Y.-K., Lee Y. H., Kim S. G., Jund P., Tomanek D., Smalley R. E. Morphology and stability of growing multiwall carbon nanotubes // *Phys. Rev. Lett.*- 1997.- Vol.79.- P.2065-2068.
19. Kitamura N., Oshiyama A. Open edge growth mechanisms of single wall carbon nanotubes // *J. Phys. Soc. Jpn.*- 2001.- Vol. 70.- P.1995-2011.
20. Louchev O. A., Kanda H., Rosen A., Bolton K. Thermal Physics in carbon nanotube growth kinetics // *J. Chem. Phys.*- 2004.- Vol. 121.- P. 446-457.