

Abdisaidov Ilyos Jo'rayevich
Ion-plazma va lazer texnologiyalari instituti
Katta ilmiy xodimi
Email: abdisaidov@iplt.uz +998971559281
UO'K 538.915:620.9

**CVD USULIDA SINTEZ QILINGAN UGLEROD
NANONAYCHALARINI AMORF UGLERODDAN TOZALASHNING
SAMARALI USULI**

Annotatsiya. *Ushbu maqolada kimyoviy bug' cho'ktirish (CVD) usulida past haroratlarda sintez qilingan uglerod nanonaychalarini (UNN) amorf ugleroddan tozalashning yangi, oddiy va samarali usuli taqdim etiladi. Tadqiqotda etil spirti asosidagi uglerod manbai va nikel nanokatalizatori qo'llanilgan bo'lib, sintez jarayoni uch xil sharoitda amalga oshirildi: tashuvchi gaz va par holatdagi suv ishtirokisiz, argon gazi bilan va argon gazi hamda par holatdagi suv bilan. Olingan UNN Raman spektroskopiyasi yordamida tavsiflandi. Tahlillar amorf uglerod intensivligi par holatdagi suv qo'llanganda keskin kamayishini va uning to'liq yo'qolishini ko'rsatdi.*

Kalit so'zlar: *Uglerod nanonaychalari, CVD usuli, amorf uglerod, Raman spektroskopiyasi, katalizator faolligi, tozalash usullari, par holatdagi suv*

Абдисаидов Илёс Жураевич
Институт ионно-плазменных и лазерных технологий
Старший научный сотрудник

**ЭФФЕКТИВНЫЙ МЕТОД ОЧИСТКИ УГЛЕРОДНЫХ
НАНОТРУБОК, СИНТЕЗИРОВАННЫХ МЕТОДОМ CVD, ОТ
АМОРФНОГО УГЛЕРОДА**

Аннотация. *В данной статье представлен новый, простой и эффективный метод очистки углеродных нанотрубок (УНТ), синтезированных при низких температурах методом химического осаждения из газовой фазы (CVD), от аморфного углерода. В исследовании использовались углеродный источник на основе этилового спирта и*

никелевый нанокатализатор, а процесс синтеза был проведён в трёх различных условиях: без носительного газа и водяного пара, с подачей аргона, а также с подачей аргона и водяного пара. Полученные УНТ были охарактеризованы с помощью Раман-спектроскопии. Анализ показал, что интенсивность аморфного углерода резко снижается при использовании водяного пара и полностью исчезает.

Ключевые слова: Углеродные нанотрубки, метод CVD, аморфный углерод, Раман-спектроскопия, активность катализатора, методы очистки, парообразная вода

Abdisaidov Ilyos Juraevich

Institute of Ion-Plasma and Laser Technologies

Senior Researcher

AN EFFICIENT METHOD FOR PURIFYING CARBON NANOTUBES SYNTHESIZED BY THE CVD METHOD FROM AMORPHOUS CARBON

Abstract. *This article presents a new, simple, and efficient method for removing amorphous carbon from carbon nanotubes (CNTs) synthesized at low temperatures using the chemical vapor deposition (CVD) method. In the study, ethyl alcohol was used as the carbon source and nickel nanocatalyst, and the synthesis process was carried out under three different conditions: without carrier gas and water vapor, with argon flow, and with both argon and water vapor. The obtained CNTs were characterized using Raman spectroscopy. The analysis showed that the intensity of amorphous carbon significantly decreases when water vapor is used and disappears completely.*

Keywords: *Carbon nanotubes, CVD method, amorphous carbon, Raman spectroscopy, catalyst activity, purification methods, water vapor*

Kirish

Uglerod nanonaychalari yengil vaznga, yuqori mustahkamlikka, yaxshi elektr va issiqlik o'tkazuvchanligiga ega bo'lgani uchun ko'plab sohalarda keng

qo'llaniladi. Jumladan, elektronika (display ekranlar, chipar), materialshunoslik (mustahkam kompozitlar), energetika va energiya saqlash (litiy-ion batareyalar, vodorod saqlash, quyosh batareyalari), shuningdek farmasevtika va biotibbiyotda (dori yetkazish, saratonni tashxislash va davolash) sohalarida ulardan foydalaniladi [1]. UNN asosan elektr yoyini razryadlash, lazerli ablyatsiya va kimyoviy bug' cho'ktirish (CVD) usullari yordamida sintez qilinadi [2]. Shulardan CVD usuli past haroratlarda yuqori tozalikdagi va ko'p miqdordagi UNN olish imkonini berishi bilan ajralib turadi [3]. UNN dan yuqorida sanab o'tilgan sohalarda samarali foydalanish uchun uning tozaligi muhim ahamiyatga ega. Sintez texnikasiga qarab, UNN ni tozalash bo'yicha turli usullar qo'llaniladi [4]. Tozalash usullarini uch asosiy toifaga ajratish mumkin: kimyoviy, fizik va ularning kombinatsiyasi [5].

Kimyoviy tozalash selektiv oksidlanish tamoyiliga asoslanadi: amorf uglerod UNN ga nisbatan tezroq oksidlanadi, metall aralashmalar esa kislotalar yordamida eritiladi. Bu usul amorf uglerod va metall zarralarini samarali yo'qotadi [6]. Biroq, kimyoviy tozalashning kamchiligi — UNN strukturasiga zarar yetkazishi; xususan, naychalar qisqarishi, struktura nuqsonlarining paydo bo'lishi va $-OH$, $-C=O$, $-COOH$ kabi funksional guruhlar bilan funksionalizatsiyalanishidir [7].

Fizik tozalash usullari funksional guruhlar adsorbsiyasiga asoslanib, grafen tuzilmasining π -sistemi yaxlitligini saqlaydi va yuqori og'irlik ulushidagi UNN kerak bo'lganda qo'llaniladi. Bu usullar kamroq zarar keltiradi, biroq kimyoviy usullarga nisbatan murakkabroq va kamroq samarali hisoblanadi [8].

Uchinchi tur — ko'p bosqichli tozalash, ya'ni fizik va kimyoviy yondashuvlarning kombinatsiyasi bo'lib, yuqori rentabelli va yuqori sifatli UNN olish imkonini beradi [9].

Sintezdan so'ng UNN tarkibida qoladigan metall katalizatorlar (Fe, Ni, Co), amorf uglerod va boshqa iflosliklarni yo'qotish uchun odatda HNO_3 , HCl , H_2SO_4 kabi kislotalar, shuningdek aralash kislotalar (HNO_3/H_2SO_4) ishlatiladi. HNO_3 va HCl ishlatilgan holatlarda ko'p devorli UNN tarkibidagi Fe/Ni miqdori 90% gacha

kamaytirilgani ma'lum qilingan [10]. Biroq, ushbu usul katalizatorni to'liq yo'qotmaydi. Ushbu [11] ishda esa ko'p bosqichli tozalash qo'llanilgan bo'lib, uning asosiy bosqichi xona haroratida ultratovush yordamida 30% li H_2O_2 eritmasida 7 kun davomida oksidlashdir; keyin HCl bilan ishlov berilgan. Ushbu yondashuvning kamchiligi — jarayonning juda uzoq davom etishidir.

Sintez jarayonida hosil bo'ladigan amorf uglerod odatda gaz fazali oksidlash bilan yo'qotiladi. Bunda kislorod (O_2) muhiti ostida 300–500°C da ishlov beriladi; ammo harorat noto'g'ri tanlansa, UNN ham oksidlanib ketishi mumkin.

Mazkur maqola sintez qilingan UNN ni amorf ugleroddan tozalashning yangi, oddiy va samarali usuliga bag'ishlangan.

Tadqiqot metodologiyasi

UNN sintezi CVD usulida, “Amaliy nanotexnologiyalar” laboratoriyasida yig'ilgan qurilmada amalga oshirildi. Uglerod manbai sifatida par holatdagi etil spirti ishlatildi. Katalizator/taglik tizimi zol-gel spin qoplash orqali tayyorlangan bo'lib, katalizator sifatida nikel, taglik sifatida esa sapfir tanlandi. UNN sintezi 500°C haroratda 1 soat davom ettirildi.

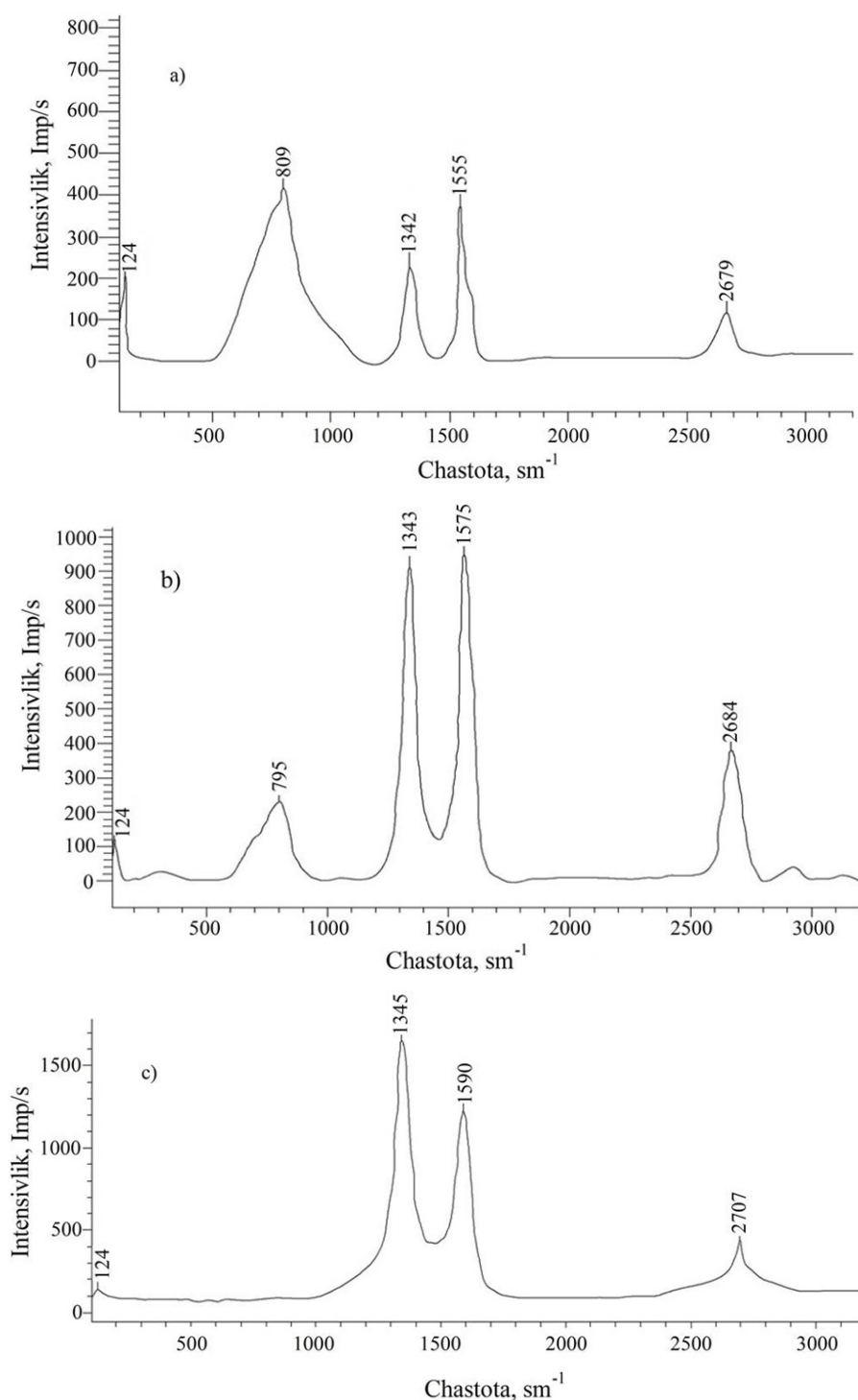
Sintez uch xil sharoitda amalga oshirildi:

- a) tashuvchi gaz va par holatdagi suv qo'llanmagan;
- b) etil spirti bilan birga Ar gazi (3 l/min) berilgan;
- c) reaktor 500°C ga yetgach, dastlab 1 daqiqa davomida par holatdagi suv berilib, so'ng b) holatdagi jarayon bajarilgan.

Ushbu sharoitlarda olingan UNN Raman spektroskopiyasi yordamida tahlil qilindi.

Tahlillar va natijalar

UNN ni tezkor va yuqori aniqlikda tavsiflash uchun Raman spektroskopiyasi eng qulay usullardan biridir. Tahlillar 532 nm to'lqin uzunligiga ega RL532 Class 3B lazeri, 1200 chiziq/mm difraksion panjara va Renishaw CCD detektori yordamida 100–3200 cm^{-1} chastota diapazonida olib borildi (1-rasm).



1-rasm. CVD usulida past haroratda sintez qilingan UNN ning Raman spektrlari: a) Ar va bug' holatdagi suv berilmagan; b) faqat Ar berilgan; c) Ar va par holatdagi suv berilgan.

UNN ning bir nechta Raman tebranish rejimlari orasida radial nafas olish rejimi (RBM) ularning geometrik xususiyatlarini aniqlashda muhim rol o'ynaydi va radial yo'nalishdagi barcha atomlarning sinxron va simmetrik faza ichidagi tebranishlariga mos keladi [12]. Bundan tashqari bir devorli UNN ning Raman

spektrlaridagi RBM chastotasi orqali ularning diametri quyidagi (1) formula yordamida hisoblash mumkin [13].

$$\omega = \frac{234}{d} + 10 \quad (1)$$

1-rasmdan ko'rinib turibdiki, bir devorli UNN ni xarakterlovchi RBM cho'qqi barcha namunalarda 124 sm^{-1} chastotada kuzatilgan va (1) formuladan foydalangan holda sintez qilingan UNN ning diametri $\sim 2 \text{ nm}$ ekanligi aniqlandi.

UNN tuzilishidagi nuqsonlar materiallarning xossalarini o'zgartiradi va uning tuzilishidagi nuqsonlarning mavjudligini $\sim 1340 \text{ sm}^{-1}$ chastota atrofida kuzatiladigan D cho'qqisi xarakterlaydi [14]. Bu xarakterlovchi cho'qqi yuqoridagi 1(a) grafikda 1342 sm^{-1} , 1(b) grafikda 1343 sm^{-1} hamda 1(c) grafikda esa 1345 sm^{-1} chastotada kuzatilgan.

UNN ning Raman spektroskopiyasi tahlil natijalarida olti burchakli panjaradagi C-C bog'lanish tekisligidagi cho'zilish rejimini ifodalaydigan G cho'qqisi $1500 \div 1600 \text{ sm}^{-1}$ chastota oralig'ida, G' cho'qqi esa 2-darajali sp^2 uglerodlari uchun odatda $2500 \div 2800 \text{ sm}^{-1}$ oralig'ida kuzatiladi [15]. 1-rasmdan ko'rinib turibdiki, G va G' xarakterlovchi cho'qqilar, yuqorida ta'kidlab o'tilgan chastota oraliqlarida kuzatilgan. Amorf uglerodni xarakterlovchi cho'qqi [16], tashuvchi gaz va par holatdagi suvdan foydalanmagan holda sintez qilingan 1(a) namunada 809 sm^{-1} da kuzatilgan bo'lib, intensivligi baland ekanligi, faqat Ar berilgan 1(b) namunada bu cho'qqining balandligi pasayganligi, Ar va par holatdagi suv berilgan 1(c) namunada esa, bu cho'qqi kuzatilmaganligini ko'rishimiz mumkin. Bundan shuni xulosa qilamizki, bug' holatdagi suv nanokatalizator aktivligini oshiradi hamda amorf uglerod hosil bo'lishiga to'sqinlik qiladi.

Xulosa

Ushbu tadqiqotda CVD usulida sintez qilingan UNN ni amorf ugleroddan tozalashning samarali usuli ishlab chiqildi. Raman spektroskopiyasi natijalari shuni ko'rsatdiki, sintez jarayonida par holatdagi suvdan foydalanish amorf uglerodning sezilarli kamayishiga, hatto to'liq yo'qolishiga olib keladi. Bu esa

nanokatalizatorlarning faolligini oshirib, toza va strukturaviy yaxlit UNN hosil bo'lishini ta'minlaydi. Umuman olganda, taqdim etilgan yondashuv UNN ni tozalash jarayonini soddalashtiradi, yuqori sifatli mahsulot olishga imkon yaratadi va kelgusida nanotexnologiyalarning turli sohalarida qo'llash uchun istiqbolli hisoblanadi.

Foydalanilgan adabiyotlar

1. Dervishi E. et al. Carbon nanotubes: synthesis, properties, and applications //Particulate Science and Technology. – 2009. – T. 27. – №. 2. – C. 107-125.
2. Rathinavel S., Priyadharshini K., Panda D. A review on carbon nanotube: An overview of synthesis, properties, functionalization, characterization, and the application //Materials Science and Engineering: B. – 2021. – T. 268. – C. 115095.
3. Choudhary N., Hwang S., Choi W. Carbon nanomaterials: a review //Handbook of nanomaterials properties. – 2014. – C.709-769.
4. Eatemadi A. et al. Carbon nanotubes: properties, synthesis, purification, and medical applications //Nanoscale research letters. – 2014. – T. 9. – №. 1. – C. 393.
5. Hou P. X., Liu C., Cheng H. M. Purification of carbon nanotubes //carbon. – 2008. – T. 46. – №. 15. – C. 2003-2025.
6. Makama A. B. et al. Recent developments in purification of single wall carbon nanotubes //Separation Science and Technology. – 2014. – T. 49. – №. 17. – C. 2797-2812.
7. Hussain S. et al. Spectroscopic investigation of modified single wall carbon nanotube (SWCNT) //Journal of Modern Physics. – 2011. – T. 2. – №. 6. – C. 538-543.
8. Rouf S. A. et al. Synthesis and purification of carbon nanotubes //Carbon nanotubes-redefining the world of electronics. – IntechOpen, 2021.
9. Montoro L. A., Rosolen J. M. A multi-step treatment to effective purification of single-walled carbon nanotubes //Carbon. – 2006. – T. 44. – №. 15. – C. 3293-3301.
10. Domagała K. et al. Purification and functionalisation of multi-walled carbon nanotubes //Materials Letters. – 2019. – T. 253. – C. 272-275.
11. Feng Y. et al. Room temperature purification of few-walled carbon nanotubes with high yield //ACS nano. – 2008. – T. 2. – №. 8. – C. 1634-1638.
12. Ghavanloo E., A. Fazelzadeh S., Rafii-Tabar H. Analysis of radial breathing-mode of nanostructures with various morphologies: a critical review //International Materials Reviews. – 2015. – T. 60. – №. 6. – C. 312-329.
13. Roy S. et al. Diameter control of single wall carbon nanotubes synthesized using chemical vapor deposition //Applied surface science. – 2014. – T. 321. – C. 70-79.
14. Xu J. L. et al. Efficient and reversible electron doping of semiconductor-enriched single-walled carbon nanotubes by using decamethylcobaltocene //Scientific Reports. – 2017. – T. 7. – №. 1. – C. 6751.

15. Saito R. et al. Raman spectroscopy of graphene and carbon nanotubes //Advances in Physics. – 2011. – T. 60. – №. 3. – C. 413-550.
16. Dychalska A. et al. Study of CVD diamond layers with amorphous carbon admixture by Raman scattering spectroscopy //Mater. Sci.-Pol. – 2015. – T. 33. – №. 4. – C. 799-805.