Нұрболат Шырын Таңырбергенқызының
8D07110 – «Материалтану және жаңа материалдар технологиясы»
мамандығы бойынша философия докторы (PhD) дәрежесін алуға арналған
«КӨМІРТЕКТІ МАТЕРИАЛДАР МЕН МЕТАЛЛ ОКСИДТЕРІ НЕГІЗІНДЕ СУПЕРКОНДЕНСАТОРЛАРҒА АРНАЛҒАН ЭЛЕКТРОДТЫ КОМПОЗИТТЕР»
тақырыбындағы диссертациясына

АҢДАТПА

Жұмыстың жалпы сипаттамасы. Диссертация энергияны электрохимиялық сақтау электродтарын жасау үшін көміртекті материалдар мен металл оксидтерінің композиттерін өндіруге, сондай-ақ синтезделген және тотықсызданған кобальт оксиді электродтары және синтезделген белсендірілген көмір мен кобальт оксидінен тұратын композит негізіндегі электродтардың морфологиясы мен электрлік қасиеттерін зерттеуге арналған.

Зерттеу өзектілігі. Суперконденсаторлардың сыйымдылығын арттыру үшін гибридті электродтар көбінесе жоғары меншікті бетті қамтамасыз ететін көміртекті материалдарды (белсендірілген көмір, көміртекті нанотүтіктер, графен және т.б.) және псевдосыйымдылық әсерін көрсететін ауыспалы металл оксидтерінің нанобөлшектерін пайдалана отырып жасалады.

Ауыспалы металд оксидтерімен қатар конденсаторлар үшін электродтарды дайындау кезінде кобальт оксидін қолдану кең таралған және тотығу-тотықсыздану реакцияларының көптігіне, жоғары теориялық сыйымдылығына, төмен құнына және электр өткізгіштігінің болуына байланысты жоғары сыйымдылыққа қол жеткізу үшін перспективті бағыт болып табылады.

Бірақ, біздің білуімізше, жоғары сыйымдылықты алу үшін электрохимиялық өлшеулер процесінде анодтық тотығу кезінде өсірілген, жұқа қабатты оксидпен қапталған металл нанобөлшектерді қолдану туралы зерттеулер өте аз. Сонымен қатар мұндай тәсілдің бірқатар артықшылықтары бар: металл нанобөлшектерінің өлшемі мен оксидті қабат қалыңдығының аздығы электродтың төмен кедергін қамтамасыз етеді және жылдам зарядталу мен фарадейлік реакциялардың кең спектріне ықпал етеді. Сондықтан бұл жұмыста кобальт оксидін сутегіні атмосферасында тотықсыздандыру арқылы алынған металл кобальттан гибридті конденсатор жасау жөніндегі зерттеулер ұсынылған.

Нөлдік, бір өлшемдік, екі өлшемдік және үш өлшемдік наноқұрылымдарды синтездеу сияқты әртүрлі әдістер жоғары меншікті сыйымдылығы және жоғары салмақтық жүктемесі бар Co_3O_4 негізінде аккумуляторлық үлгідегі электродтарды синтездеу үшін қолданылады. Алайда бұл электродтардың электрондық өткізгіштігі салыстырмалы түрде төмен. Электродтардың жоғары псевдосыйымдылық қасиеттеріне қол жеткізу үшін меншікті беті үлкен және псевдосыйымдылық қасиетке ие Co_3O_4

нанобөлшектерін немесе оусидтің жұқа қабықшаларын пайдалану қажет. Сондықтан бұл жұмыста электродтар жасауға арналған жоғары меншікті сыйымдылыққа ие кобальт оксиді аэрозоль пиролизі және химиялық шөгу әдісі сияқты әртүрлі әдістермен синтезделген.

Суперконденсаторларды дайындау кезінде шығыны аз және жоғары өнімділікті қамтамасыз ете алатын зерттеулер өзекті болып табылады. Екі электроды бірдей материалдан жасалған және массасы мен ауданы бірдей симметриялы конденсаторлар асимметриялық жүйелермен салыстырғанда неғұрлым қарапайым өндірістік процестерді талап етеді. Осылайша, симметриялы конденсаторлар жаппай өндіріс кезінде тиімділік тұрғысынан тартымды. Алайда суперконденсаторлар үшін неғұрлым кең таралған материал болып табылатын белсендірілген көмірден (AC) жасалған симметриялы конденсаторлардың сыйымдылығы оңтайландырылмайды. Бұл айнымалы ток конденсаторының анодты және катодты электродтарының потенциалдары әр түрлі болуынан. Сондықтан кобальт нанобөлшектерінен және Co@AC синтезделген белсендірілген көмірден жасалған композит негізіндегі симметриялы электродтары бар суперконденсаторды дайындау жөніндегі диссертацияда ұсынылған зерттеу өзекті жұмыс болып табылады.

Зерттеу нысандары – көміртекті материалдар, Co_3O_4 нанобөлшектері, Ag наножіпшелері, суперконденсаторларға арналған Co_3O_4 электродтары және Co@AC композитінен жасалған электродтар.

Зерттеу пәні кобальт нанобөлшектері және белсендірілген көмір негізінде синтезделген Co@AC композиті мен Co_3O_4 нанобөлшектерін алу әдістері, олардың құрылымы және электрхимиялық қасиеттері.

Диссертациялық зерттеудің мақсаты суперконденсатор электродтарын жасауға арналған материалдарды синтездеудің тәжірибелік әдістерін зерттеу, электрохимиялық конденсаторлардың тәжірибелік үлгілерін дайындау болып табылады.

Көрсетілген мақсатты жүзеге асыру үшін келесідей тапсырмалар мен міндеттер алға қойылды:

- Суперконденсатор электродтарын дайындау үшін кобальт оксиді нанобөлшектерін алу әдістерін әзірлеу;
- Алдын-ала берілген сипаттамаларға сай, құрамында кобальт нанобөлшектері бар белсендірілген көмірді синтездеу;
- Алынған материалдардың сипаттамаларын зерттеу және электродтардың жоғары электрхимиялық параметрлеріне қол жеткізу әдістерін әзірлеу;
- Әртүрлі технологиялық өңдеулердің электродтың электрхимиялық қасиеттеріне әсерін зерттеу.

Зерттеу әдістері: Сканерлеуші (СЭМ) және жарықтандырушы (ТЭМ) электрондық микроскопия, Рентген дифракциясы (XRD), Раман

спектроскопиясы, Электрохимиялық импеданс спектроскопиясы (EIS), Циклдық вольтамперометрия (CV), Гальваностатикалық заряд-разряд әдісі (GCD), Рентгендік фотоэлектрондық спектроскопия (XPS), БЭТ әдісі (газдың адсорбция/десорбция әдісі), Энергодисперсті рентгендік спектроскопия (EDX).

Зерттеудің ғылыми жаңалығы:

Диссертациялық жұмыстың жаңалығы мен бірегейлігі онда **алғаш рет**:

- Co_3O_4 нанобөлшектерінің тотықсыздандырудан кейінгі электрохимиялық белсенділігі және меншікті электрсыйымдылығының өзгерісі анықталды.
- H_2-өңдеу режимдерінің Co_3O_4 нанобөлшектерінен жасалған электродтардың меншікті сыйымдылығының ұлғаюына жауапты жұқа электрохимиялық белсенді қабатты қалыптастыруға әсері зерттелді.
- Тотықсыздану процесінде Co_3O_4 нанокристалл құрылымының CoO фазасына трансформациясы және тотығу кезінде CoO құрылымынан Co_3O_4 құрылымына кері ауысу ерекшеліктері зерттелді.
- Кобальт нанобөлшектері және белсендірілген көмір негізінде синтезделген Co@AC композитінен жасалған симметриялы суперконденсатор жасау әдістері және олардың электрхимиялық қасиеттері зерттелді.

Қорғауға шығарылатын тұжырымдар:

1. Co_3O_4 негізіндегі электродтардың сыйымдылығының артуы Co_3O_4 бөлшектерін 300 °C-ге дейінгі температурада 1 сағатқа дейін сутегі атмосферасында тотықсыздандыру, кейін баяу тотықтыру арқылы жүзеге асырылады.
2. Co_3O_4 нанобөлшектері негізіндегі электродтарды 275 °C температурада тотықсыздандыру оның құрылымын бұзбайды және электродтардың меншікті сыйымдылығын 4-5 есе арттырады, бұл ретте Co^{2+}/Co^{3+} ауысуы сыйымдылыққа айтарлықтай үлес қосады.
3. Co_3O_4 бөлшектерінің бетін белсендіру және электродтардың электрохимиялық белсенділігін арттыру нанобөлшектердің қайта кристалдануы нәтижесінде жүзеге асады, мұнда Co_3O_4 нанокристалл құрылымының CoO фазасына өзгеруі және Co^{2+} күй концентрациясының өсуі H_2-өңдеуімен басталады.
4. Симметриялы конденсаторға арналған кобальт нанобөлшектері және белсендірілген көмір негізіндегі композитті (Co@AC) синтездеу теріс электродтың сыйымдылығын сақтай отырып, фарадей реакциялары есебінен оң электродтың сыйымдылығын ~3 еседен астам арттырады.

Зерттеудің ғылыми-тәжірибелік маңыздылығы.

Осы зерттеудің ғылыми-тәжірибелік маңыздылығы көміртекті материалдар мен металл оксидтері негізіндегі композитті материалдарды жасауға арналған жаңа тәсілдерді әзірлеуде, бұл электрохимиялық конденсаторлардың сипаттамаларын едәуір жақсартуға мүмкіндік береді.

Белсендірілген көмір мен кобальт нанобөлшектерін қолдану материалдардың синергетикалық өзара әрекеттесуінің арқасында электродтардың меншікті сыйымдылығын арттырып, қайтымды сыйымдылықты ұлғайтуға және циклдік заряд-разрядтау кезінде тұрақтылықты жақсартуға ықпал етеді. Бұл жоғары энергия тығыздығын, ұзақ мерзімде жұмыс істеуге қабілетін және электромеханикалық жүктемелерге төзімділікті қажет ететін энергияны сақтау және түрлендіру құрылғыларына арналған заманауи суперконденсаторлар үшін өте маңызды. Co_3O_4 нанобөлшектері негізіндегі композиттерді синтездеу және құрылымдық модификациялау кедергісі төмен және тотығу-тотықсыздану реакцияларының жоғары жылдамдығын сақтай алатын жұқа белсенді қабат түзу арқылы олардың электрохимиялық қасиеттерін арттыруға мүмкіндік берді. Жоғары сыйымдылықты қамтамасыз ету үшін оңтайландырылған симметриялы электродтарды жасау өндірістік процестерді жеңілдетіп, олардың бағасын төмендетуге ықпал етеді, зерттеу барысында қол жеткізілген дайын шешімдер өнеркәсіптік деңгейде энергия сақтау құрылғыларын өндіруде перспективалы етеді. Жұмыс нәтижелері энергия сақтау жүйелерінің тиімділігін және экономикалық қолжетімділігін арттыру үшін маңызды, ғылыми және қолданбалы міндеттерді қанағаттандыруға бағытталған.

Ғылымның даму бағыттарына немесе мемлекеттік бағдарламаларға сәйкестігі.

Диссертациялық жұмыс AP09058501 «Энергияны сақтау және фотоэлектрохимиялық құрылғылар үшін перспективті наноқұрылымды материалдар жасаудың технологиялық негіздерін жасау», AP09259253 «Электрохимиялық энергияны жинақтау және сақтау құрылғыларына арналған көміртекті композиттерді әзірлеу» 2021-2023 жж. мемлекеттік гранттық қаржыландыру жобалары аясында жүргізілді.

Автордың жеке үлесі.

Диссертациялық жұмыстың мақсаты мен міндеттері ғылыми жетекші ф.-м.ғ. д., Абдуллин Хабибулла Абдуллаевичпен бірлесе отырып құрылды. Метал оксидтерін синтездеу, кобальт нанобөлшектері және белсендірілген көмір негізіндегі Co@AC композитін синтездеу, электродты жинау және электрохимиялық сипаттамаларды зерттеу бойынша тәжірибелік өлшемдер кешенін автор жеке өзі жүргізді. Алынған Co@AC композитінің XRD және белсендірілген көмір БЭТ нәтижелерін автор Пейсли қаласында өткен тағылымдама аясында жеке алды. Синтезделген үлгілердің беттік морфологиясы және Раман спектрлері әл–Фараби атындағы ҚазҰУ–нің Ашық типтегі Ұлттық нанотехнологиялық зертханасының және Батыс Шотландия Университетінің зерттеу тобының көмегімен алынды. Диссертацияда баяндалған барлық нәтижелер және қорытындылар ғылыми жетекшімен бірлесіп жасалынды. Автор ғылыми жетекшімен бірлесе отырып ғылыми мақалаларды жазуға және жұмыс нәтижелерін конференцияларға қатысу арқылы жұмыстың аппробациядан өтілуіне тікелей қатысты.

Жүргізілген зерттеулердің апробациясы.

Зерттеу нәтижелері бойынша диссертациялық жұмысты жазу барысында жасалған зерттеу жұмыстарының нәтижелері келесідей халықаралық ғылыми-техникалық конференцияларда көрсетіліп, қорғалды: The 8 International conference on nanomaterials and advanced energy storage system INESS-2020 (Astana, 2020), «Фараби әлемі» халықаралық студенттер мен жас ғалымдар конференциясы (Алматы, 2021). XVI «Физико-химические проблемы возобновляемой энергетики» конференциясы (Санкт-Петербург 2021).

Жарияланымдар.

Диссертациялық жұмыстың нәтижелері бойынша 9 баспалық жұмыс жарияланды. Соның ішінде Scopus базасында CiteScore көрсеткіштік процентильге ие Q2 квартиліне кіретін журналдарда 3 мақала, ҚР БҒМ БҒСБК ұсынатын ғылыми журналдарда 3 мақала, халықаралық ғылыми - практикалық конференциялардың жинақтарында 3 ғылыми жұмыс жарияланды, олардың 1 Scopus базасына кіреді.

Диссертация құрылымы мен көлемі

Диссертациялық жұмыс 79 суреттен, 3 кестеден, 33 формуладан және қосымшадан тұратын 108 бет көлемінде жазылған. Жұмыс қысқартулар мен шартты белгілер, кіріспе, 5 негізгі бөлім, қорытынды және 153 қолданылған әдебиеттер тізімін қамтиды.