



UDK: 53.03, 53.04, 544, 227, 544.228

Tursunpo'lat JO'RABOYEV,

O'zR FA, Ion-Plazma va Lazer Texnologiyalari Instituti, kichik ilmiy xodimi

E-mail: tursunpulaturaboev24@gmail.com

Eldorbek BAKIROV,

O'zR FA, Ion-Plazma va Lazer Texnologiyalari Instituti, stajyor tadqiqotchi

E-mail: eldorbekbakirov4ionplazma@gmail.ru

O'tkir O'LJAYEV,

O'zR FA, Ion-Plazma va Lazer Texnologiyalari Instituti, PhD talabasi

uub242526@gmail.com

Umedjon XALILOV,

O'zR FA, Ion-Plazma va Lazer Texnologiyalari Instituti, bosh ilmiy xodim

Belgiya, Antwerpen Universiteti, Plasmant tadqiqot guruhi

E-mail: umedjon.khalilov@uantwerpen.be

O'zR FA, Geologiya fanlari universiteti, Aniq va tabiiy fanlar kafedrasida dotsenti, f.-m.f.d. X.Raximov taqrizi asosida

ГРАФЕН СИНТЕЗИ UCHUN YUQORI INDEKSLI (331) NIKEL TAGLIGI

Аннотация

Elektron va mexanik xususiyatlari hamda yuqori kimyoviy barqarorligi sababli grafenni turli xil usullar bilan o'stirish bo'yicha taqqidiotlar olib borilmoqda. Bular orasida CVD eng samarali usullardan biri bo'lsada, grafen o'stirishda asosiy muammolardan biri metall katalizator sirtini to'g'ri tanlash. Shu sababli, ushbu tadqiqot ishida, yuqori Ni(331) va past Ni(111) indeksli sirtlarda grafen o'sish ehtimoli solishtirilgan holda molekulyar dinamika (MD) usuli orqali baholandi. Grafenli g-Ni(331) sirtining sirt energiyasi grafen o'stirishda eng samarali hisoblanadigan g-Ni(111) sirtidan ham (0.5 J/m^2) pastroq bo'lishi aniqlandi. Bu esa, yuqori indeksli Ni(331) sirtlarda ham past indeksli Ni(111) sirtlardagi kabi grafen o'stirish mumkinligi, ular yordamida nanoqurilmalar (nanotransistor, batareykalar, suv filtrlari, kondensatorlar va h.k) hosil qilish bo'yicha eksperimentatorlarga tavsiyalar berish mumkin.

Kalit so'zlar: Ni sirlari, kimyoviy bug'ni cho'ktirish (CVD) grafen, Molekulyar Dinamika, sirt energiyasi.

ВЫСОКОИНДЕКСНАЯ (331) НИКЕЛЕВАЯ ПОДЛОЖКА ДЛЯ СИНТЕЗА ГРАФЕНА

Аннотация

Благодаря его электронным и механическим свойствам, а также высокой химической стабильности ведутся исследования по выращиванию графена различными методами. Среди них CVD является одним из наиболее эффективных методов, но одной из основных проблем при выращивании графена является правильный выбор поверхности металлического катализатора. Поэтому в данной исследовательской работе вероятность роста графена на поверхностях с высоким индексом Ni(331) и низким индексом Ni(111) оценивалась методом молекулярной динамики (МД). Установлено, что поверхностная энергия поверхности g-Ni(331) с графеном ниже (0.5 Дж/м^2), чем у поверхности g-Ni(111), которая считается наиболее эффективной при выращивании графена. Это означает, что можно выращивать графен на поверхностях Ni(331) с высоким индексом, а также на поверхностях Ni(111) с низким индексом, которые можно использовать для изготовления наноустройств (нанотранзисторов, аккумуляторов, водяных фильтров, конденсаторов и т. д.).

Ключевые слова: поверхность Ni, химическое осаждение из газовой фазы (CVD) графена, молекулярная динамика, поверхностная энергия. HIGH-INDEXX (331)

NICKEL SUBSTRATE FOR GRAPHENE SYNTHESIS

Abstract

Due to its electronic and mechanical properties and high chemical stability, research is being conducted on growing graphene by various methods. Among them, CVD is one of the most effective methods, but one of the main problems in graphene growth is the correct selection of the metal catalyst surface. Therefore, in this research work, the probability of graphene growth on high Ni(331) and low Ni(111) index surfaces was evaluated by molecular dynamics (MD) method. It was found that the surface energy of the g-Ni(331) surface with graphene is lower (0.5 J/m^2) than that of the g-Ni(111) surface, which is considered the most effective in growing graphene. This means that it is possible to grow graphene on high-index Ni(331) surfaces as well as on low-index Ni(111) surfaces, which can be used to make nanodevices (nanotransistor, batteries, water filters, capacitors, etc.).

Keywords: Ni surfaces, chemical vapor deposition (CVD) graphene, Molecular Dynamics, surface energy.

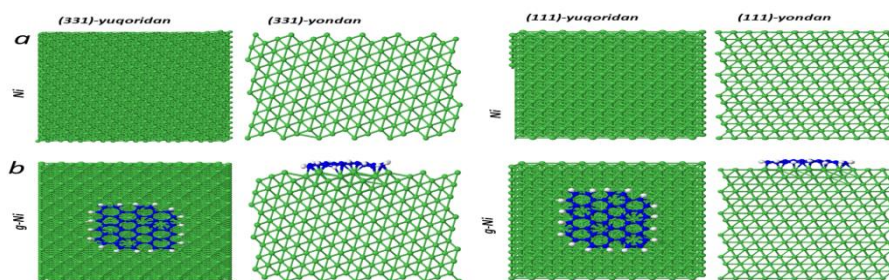
Kirish. Grafen[1] noyob electron[2,3,4] va mexanik [5] xususiyatlarga, hamda yuqori kimyoviy barqarorlikka[6] ega bo'lgan nanomateriallardan biri bo'lib, u so'nggi yillarda ko'plab sohalarda qo'llanilmoqda [7,8]. Xususan, undan elektrokimyo [9,10], energiya saqlash [9, 11, 12], geliotexnika [5, 11, 12], nanoelektronika [5, 9] kabi sohalarda turli xil maqsadlarda foydalanilmoqda. Shu sababli, uning sinteziga bo'lgan talab kuchayib, bu bo'yicha salmoqli tadqiqot ishlari olib borilmoqda [13].

So'nggi yillarda grafen sintezi uchun bir necha usullar, jumladan, mexanik eksfoliatsiya [14], SiC ning parchalanishi [14], impuls lazerli cho'ktirish (Pulsed Laser Deposition - PLD) [14], kimyoviy bug'larni cho'ktirish (Chemical Vapor

Deposition - CVD) [15] usullari qo'llanilib kelinmoqda. Grafenni ushbu sintez usullar yordamida olish bo'yicha nazariy [16], eksperiment [17] va modellashtirishga [18] oid izchil tadqiqotlari olib borilayotganiga qaramay, uni o'stirishda foydalaniladigan tagliklarning turi va ularning barqarorligi [18] hamda katalizatorlik xususiyati [19] bo'yicha bilimlarimiz hali yetarli emas. Shu nuqtai nazardan, ushbu usullar ichida PLD va CVD usullari nisbatan samaralirog'i bo'lsada, CVD usulida grafen shakllanishini boshqarish PLD usuliga qaraganda qulayroq hisoblanadi. Xususan, bu usul ko'pgina metallarning, jumladan Fe, Co, Cu, Ag, Au, Ni va h.k., yuqori uglerod eruvchanligi tufayli ularning sirtida grafen qatlamlari sonini boshqarishni osonlashtiradi [18]. CVD usulida turli xil metal sirtlardan (Au [20], Cu [20], Ni [21], Co [22, 23], Fe [24], Pt [25], Pd [26], Ru [27, 28], Rh [29], Ir [27], Cu-Ni [30, 31].) foydalanib grafen o'stirilishi natijasida sirtlarining katalitik faollik tartibi $Ni \approx Rh \approx Co \approx Ru > Pd \approx Pt \approx Ir > Cu > Au$ tartibida ekanligi aniqlangan [10]. Bu sirtlar orasida yaxshiroq katalitik faollikka ega bo'lgan past indeksli Pt(100), Pt(110), Pt(111) va Ni(100), Ni(110), Ni(111) sirtlari grafen o'stirishda foydalanilmoqda. Ayniqsa, bu sirtlar orasida Ni(100), Ni(110) va Ni(111) sirtlari o'tkazuvchan metallar orasida katalitik jihatdan faol va uglerod atomlari bilan yaxshi bog'lana olganligi sababli, grafen o'stirishda keng qo'llaniladigan metallardan biri hisoblanadi [32, 33, 34, 35, 36, 37, 38]. Shunday bo'lsada, CVD usuli yordamida grafen o'stirishda metal katalizator sirtini to'g'ri tanlash orqali sirtida grafen shakllanishini samarali boshqarish hali ham asosiy muammolardan biri bo'lib turibdi. Shuning uchun, so'nggi vaqtlarda, bu (past indeksli) sirtlar bilan bir qatorda kimyoviy reaksiyalarda o'zining yetarli termal va kimyoviy barqarorligini namoyish etganligi tufayli yuqori indeksli sirtlar ham e'tiborni tortib kelmoqda. [19]. Xususan, (210), (331), (411), (630), (722), (730), (755), (830) sirtlardan katalizator sifatida foydalanilayapti. Shunga qaramay, bu sirtlar orqali grafen sintezi yetarlicha o'rganilmaganligi sababli sintez mexanizmlari deyarli aniqlashtirilmadi.

Shu sababli, ushbu tadqiqot ishida, yuqori indeksli Ni(331) sirtining xususiyatlarini past indeksli Ni(111) sirt bilan solishtirilgan holda molekulyar dinamika (MD) usuli orqali baholandi.

Modellashtirish usuli va tafsilotlari. Ushbu tadqiqot ishida jarayonlarni modellashtirish reaktiv molekulyar dinamika (MD) usuliga asoslangan LAMMPS [39] dasturlari to'plami orqali amalga oshirildi. Termodinamik tizimdagi Ni, C va H atomlari o'rtasidagi o'zaro ta'sirni ifodalash uchun ReaxFF potentsialining [40] Zou va boshqalar [41] tomonidan ishlab chiqilgan parametrlardan foydalanildi. Tanlangan Ni(111) va Ni(331) sirtli kristallar VESTA 3D dasturi [42] yordamida hosil qilindi (1a-rasm).



1-rasm. (a) Toza (Ni) va (b) ustiga grafen bo'lagi parallel qo'yilgan (g-Ni) nikel sirtlarining yon va yuqori tomondan ko'rinishi. Bu yerda (111) va (331) sirtli Ni kristallarining qavatlari mos ravishda 16 va 26 ga teng.

Modellashtiriluvchi fazo o'lchamlari ushbu (111) va (331) sirtli nikel kristallar uchun mos ravishda $25 \times 25 \times 22$ va $24 \times 32 \times 31$ Å ga teng bo'lib, har ikkala sirt (fazoning x va y yo'nalishi) bo'yicha davriylik shartlari qo'llanilgan. (111) va (331) sirtli Ni kristallarining z yo'nalishi bo'yicha joylashgan har bir qavatli mos ravishda 120 va 60 ta atomdan iborat bo'lib, hisoblashlarda har bir sirt uchun qavatlar soni 1 dan 31 gacha bo'lgan holatlar olingan. Ushbu sirtli kristallardagi har bir qavat orasidagi masofa (z-o'qi bo'yicha) mos ravishda 2.03 va 0.8 Å ga teng. Undan tashqari, hisoblashlarimizda, har ikkala Ni sirtlariga grafen ($C_{48}H_{18}$) bo'lagining parallel qilib joylashtirilgan holatlari ham qo'llanildi (1b-rasm).

Tanlangan model strukturalardagi sirt energiyalarini hisoblash uchun ularning potentsial energiyalari keskin tushish va birlashgan gradient usullari orqali minimallashtirildi. Energiyalarni minimalashtirish bosqichidan oldin Nose-Hoover termostatidan foydalanib strukturalar dastlab 1 K/ps tezlik bilan NpT ansamblida 50 K gacha qizdirildi, so'ngra tizim 0.1 K gacha sovitildi. Termodinamik tizimni isitish va sovutish paytida tizimdagi bosim 0 atm da saqlandi. Energiyasi minimallashtirilgan toza Ni kristallarining (ya'ni, Ni(331) va Ni(111)) sirt energiyasi quyidagi formuladan foydalanib hisoblandi [43]:

$$\gamma = \frac{1}{2A} (E_{slab} - \frac{N_{slab}}{N_{bulk}} E_{bulk}) \quad (1)$$

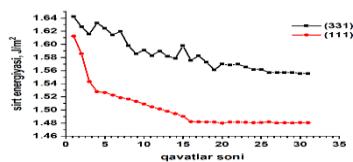
bu yerda, E_{slab} va E_{bulk} – mos ravishda taglik plitka va quymalarning energiyalari, N_{slab} va N_{bulk} – mos ravishda taglik sirti va quymadagi atomlar soni, A – sirt yuzasi.

Undan tashqari, sirtiga grafen ($C_{48}H_{18}$) qo'yilgan Ni kristallari (ya'ni, g-Ni(331) va g-Ni(111)) uchun sirt energiyasi quyidagi formuladan foydalanib hisoblandi (C.A. Becker a Metallurgy Division, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD 20899, USA Published online: 20 Jul 2011):

$$\gamma_g = \frac{1}{A} (E_{slab} - \frac{N_{slab}}{N_{bulk}} E_{bulk}) - \gamma \quad (2)$$

bu yerda, E_{slab} va E_{bulk} – mos ravishda taglik sirt va quymalarning energiyalari, N_{slab} va N_{bulk} – mos ravishda taglik sirti va quymadagi atomlar soni, A – sirt yuzasi.

Natijalar va ularning tahlili. Natijalar shuni ko'rsatdiki, Ni kristalidagi qavatlar sonining (ya'ni, kristaldagi atomlar soni va z o'qi bo'yicha qalinligining) ortishi bilan sirt energiyasi ham kamayadi. Xususan, 2-rasmda Ni(331) va Ni(111) sirtlarining sirt energiyasining qavatlar soniga bog'liqligi keltirilgan.



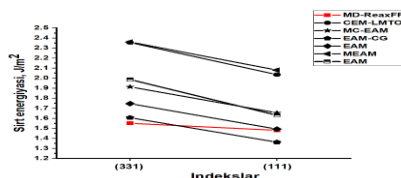
2-rasm. Ni(311) va Ni(111) sirt energiyalarining sirt qalinligiga bog'liqligi.

2-rasmdan ko'rinadiki, birinchi qavatda Ni(311) va Ni(111) sirtlar uchun sirt energiyasi mos ravishda 1.64 J/m^2 va 1.61 J/m^2 ga teng bo'lib, qavatlar soni oshgan sari bu energiya qiymatlari asta-sekin pasayib boradi. Nihoyat, Ni(311) va Ni(111) sirt energiyalari 26 va 16 qavatlardan boshlab, mos ravishda, 1.55 J/m^2 va 1.48 J/m^2 qiymatlarga erishib, qavatlar sonining keyingi oshishida bu qiymatlar o'zgarmay qoladi. Bu hodisani termodinamik tizimning barqarorlikka erishganligi orqali tushuntirilib, tizim barqarorligi molyar Gibbs erkin energiyasining o'zgarishi (ΔG) orqali ifodalanadi [44]. Xususan, erkin energiyaning o'zgarishi (musbat) sirt energiyasi va kristalning qolgan qismi (manfiy) energiyasi yig'indisidan iborat bo'lib, kristal qalinlashib (qavatlar soni oshib) borgan sari uning manfiy qiymati o'sib borishi kristal sirtning ham barqarorlashishini anglatadi [44].

Olingan natijalar Ni(311) va Ni(111) sirtlari uchun olingan boshqa hisoblash/modellashtirish usullari orqali olingan natijalar bilan solishtirildi (3-rasm).

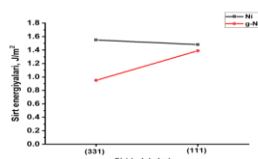
Xususan, CEM-LMTO ($2.36, 2.08 \text{ J/m}^2$) [45], EAM ($1.97, 1.62 \text{ J/m}^2$) [46] va MEAM ($2.34, 2.04 \text{ J/m}^2$) potentsiallari asosida olingan natijalari bilan bizning natijalarimiz orasida biroz farq bo'lsada, EAM-CG ($1.60, 1.36 \text{ J/m}^2$) [47], MC-EAM ($1.91, 1.65 \text{ J/m}^2$) [48], EAM potentsiallari asosida olingan natijalari ($1.75, 1.49 \text{ J/m}^2$) [49] bilan deyarli mos keladi. Chunonchi, Ni(111) va Ni(311) holatlar uchun hisoblangan sirt energiyasi qiymatlari MEAM va EAM potentsiallari asosida olingan natijalar bilan solishtirilganda, mos ravishda $0.80, 0.55 \text{ J/m}^2$ va $0.20, 0.01 \text{ J/m}^2$ ga farq qilishi aniqlandi.

4-rasmdan ko'rinadiki, toza Ni(311) va Ni(111) sirtlar energiyalari mos ravishda 1.55 va 1.48 J/m^2 tashkil etsa, g-Ni(311) va g-Ni(111) holatida esa bu qiymatlar 0.95 va 1.38 J/m^2 ga teng bo'ladi. Ushbu natijalar shuni ko'rsatadiki, Ni(311) sirtiga grafen bo'lagi qo'yilganda sirt energiyalaridagi o'zgarish Ni(111) sirtga grafen bo'lagi qo'yilgan holatdagiga nisbatan kattaroq bo'lib, 0.5 J/m^2 ga kamayadi. Bu olingan natija shunga dalolat qiladiki, tanlangan yuqori indeksli (311) sirt yordamida an'anaviy (111) sirtga o'xshab [50] grafen o'stirish mumkin.



3-rasm. Nikel (311) va Ni(111) sirtlari uchun olingan sirt energiyasi qiymatlarining boshqa hisoblash/modellashtirish usullari orqali olingan natijalari bilan taqqoslanishi.

Ni(111) va Ni(311) sirtlar bo'yicha olingan natijalar qiymatlari boshqa usullar orqali olingan qiymatlar bilan bir xil bo'lmasada, olingan natijalarda boshqa natijalarga o'xshab Ni(311) sirt energiyasi Ni(111) sirt energiyasidan kattaroq. Ni(311) va Ni(111) sirtlarda grafen o'sa olish ehtimolligini baholash uchun ushbu sirtlar yuzasiga grafen ($\text{C}_{48}\text{H}_{18}$) bo'lagi parallel qilib qo'yilib, ulardagi sirt energiyalarining o'zgarishi baholandi. Xususan, 4-rasmda toza Ni(311) va Ni(111) (qora rangda) va grafen bo'lagi qo'yilgan g-Ni(311) va g-Ni(111) (qizil rangda) sirtlarning sirt energiyalari berilgan.



4-rasm. Toza va grafen bo'lakli Ni kristalining sirt energiyalari.

Xulosa. Ushbu tadqiqot ishida, yuqori indeksli Ni(311) va past indeksli Ni(111) sirtlar sirt energiyalari kompyuterda modellashtirish orqali tadqiq etildi. Modellashtirish natijalari shuni ko'rsatdiki, qavatlar sonining oshishi sirt energiyasining kamayishiga va sirt yuzasining barqarorligiga olib keladi. Xususan, Ni(311) va Ni(111) sirtlar energiyalari (mos ravishda 1.55 J/m^2 va 1.48 J/m^2) 26 va 16-qavatlardan boshlab o'zgarishsizligi aniqlandi. Olingan natijalar boshqa kvant mexanik usullar orqali aniqlangan sirt energiyalari qiymatlari bilan deyarli mos tushdi. Hisoblash natijalar yana shuni ko'rsatdiki, grafenli Ni(311) sirtining sirt energiyasi grafenli Ni(111) sirtining sirt energiyasidan 0.5 J/m^2 ga pastroq bo'ladi. Bu esa yuqori indeksli Ni(311) sirtida ham an'anaviy Ni(111) sirtidagi kabi grafen o'stirish mumkinligini anglatadi.

Minnatdorchilik. Ushbu tadqiqot ishi O'zbekiston Respublikasi Innovatsion rivojlanish vazirligi tomonidan moliyalashtirilgan F-FA-2021-512 fundamental loyiha doirasida amalga oshirildi. Modellashtirish ishlari O'zR FA Ion-plazma va lazer texnologiyalari institutidagi NanoSim guruhi tomonidan tashkil etilgan FISTUz superkompyuterlar klasteri yordamida bajarildi.

ЛИТЕРАТУРА

1. "Cooper, et al. "Experimental review of graphene." International Scholarly Research Notices 2012 (2012)". (n.d.).
2. "Dubey, Ankit, et al. "Applications of graphene for communication, electronics and medical fields: A review." 2016
3. International Conference on Electrical, Electronics, and Optimization Techniques (ICEEOT). IEEE, 2016". (n.d.)
4. "Keith E. "Graphene synthesis",Diamond&Related Materials (2014)". (n.d.)

5. "Potdar "A review on applications of graphene." IJRAR 7, no. 4 (2020): 1-6." (n.d.).
6. A.C. T. van Duin, S. Dasgupta, F. Lorant, and W. A. Goddard, ReaxFF: A Reactive Force Field for Hydrocarbons, J. Phys. Chem. A 105, 9396 (2001). (n.d.).
7. A.V. Fedorova, "Structure of graphene on the Ni(110) surface" Phys. Solid State 53, 1952 (2011). (n.d.).
8. Varykhalov and O. Rader, Phys. Rev. B: Condens. Matter, 2009, 80, 035437. (n.d.).
9. Ackland, G. J., and R. Thetford. "An improved N-body semi-empirical model for body-centred cubic transition metals." Philosophical Magazine A 56.1 (1987): 15-30. (n.d.).
10. Adams, J. B., "Self-diffusion and impurity diffusion of fee metals using the five-frequency model and the embedded atom method." Journal of Materials Research 4.1 (1989): 102-112. (n.d.)
11. Aissa, et al. "Recent progress in the growth and applications of graphene as a smart material: a review." Frontiers in Materials 2 (2015): 58. (n.d.).
12. Bai "Functional composite materials based on chemically converted graphene." Advanced Materials 23.9 (2011): 1089-1115. (n.d.).
13. C. Cepek, A. " Chemisorption and fragmentation of C60 on Pt(111) and Ni(110), Phys. Rev. B 53, 7466 (1996). (n.d.)
14. C. Zou, Y. K. Shin, A. C. T. van Duin, H. Fang, and Z.-K. Liu, Molecular Dynamics Simulations of the Effects of Vacancies on Nickel Self-Diffusion, Oxygen Diffusion and Oxidation Initiation in Nickel, Using the ReaxFF Reactive Force Field, Acta Materialia. (n.d.).
15. C.A. Becker a Metallurgy Division , National Institute of Standards and Technology , Gaithersburg, MD 20899, USA Published online: 20 Jul 2011. (n.d.).
16. Chen, et al. "Synthesis and characterization of large-area graphene and graphite films on commercial Cu–Ni alloy foils." Nano letters 11.9 (2011): 3519-3525. (n.d.)
17. Eom et al. "Structure and electronic properties of graphene nanoislands on Co (0001)." Nano letters 9.8 (2009): 2844-2848. (n.d.).
18. Fengning Liu, "Achievements and Challenges of Graphene Chemical Vapor Deposition Growth, Advanced functional materials", 2022, 2203191. (n.d.)
19. Ferrari, et al. "Science and technology roadmap for graphene, related two-dimensional crystals, and hybrid systems." Nanoscale 7.11 (2015): 4598-4810. (n.d.)
20. Guo "Graphene nanosheet: synthesis, molecular engineering, thin film, hybrids, and energy and analytical applications." Chemical Society Reviews 40.5 (2011): 2644-2672. (n.d.).