

# ХИМИЧЕСКИЕ НАУКИ

## ЗОЛЬ-ГЕЛЬ МЕТОД ФОРМИРОВАНИЯ МЕТАЛЛОКСИДНЫХ ГАЗОЧУВСТВИТЕЛЬНЫХ ПЛЕНОК НА ИНЕРТНОЙ ПОДЛОЖКЕ

DOI: [10.31618/ESU.2413-9335.2019.4.66.316](https://doi.org/10.31618/ESU.2413-9335.2019.4.66.316)

Абдурахманов И.Э.

Бегматов Р.

Абдурахманов Э.

Самаркандский госуниверситет,

г. Самарканд.

### АННОТАЦИЯ

В результате проведенных исследований влияния состава и соотношения компонентов пленкообразующих растворов на кинетику процесса гелеобразования исходного золя подобраны оптимальные параметры, обеспечивающие высокую устойчивость исходного раствора. Установлено, что наибольшей устойчивостью (от 18 до 18,5 суток) обладают растворы, полученные при соотношении исходных компонентов ТЭОС:Н<sub>2</sub>О:спирт: НС1=1:20:30:0,05.

### ANNOTATION

As a result of studies of the influence of the composition and ratio of the components of the film-forming solutions on the kinetics of the gel formation process of the initial sol, optimal parameters are selected that provide high stability of the initial solution. It was established that the most stable (from 18 to 18,5 days) are the solutions obtained at a ratio of the initial components of TEOS: H<sub>2</sub>O: alcohol: HC1 = 1: 20: 30: 0.05.

**Ключевые слова:** золь-гель, тетраэтоксисилан, гидролиз, этанол, газочувствительный пленок, сенсор, конденсация, нанокompозит, оптимальная условия, полупроводник.

**Keywords:** sol-gel, tetraethoxysilane, hydrolysis, ethanol, gas-sensitive films, sensor, condensation, nanocomposite, optimal conditions, semiconductor.

**Введение.** В настоящее время полупроводниковые материалы находят все более широкое применение в качестве чувствительных элементов газовых сенсоров[1]. В зависимости от решаемой задачи, для получения полупроводниковых тонких пленок с воспроизводимыми и стабильными характеристиками используются различные методы. Из них получение газочувствительных пленок методом золь-гель технологии, является наиболее перспективным [2,3]. Этот метод в сочетании с последующей термообработкой продуктов реакции широко применяется для получения всевозможных оксидных нанокompозиционных плёнок.

В работе нами изучено влияние соотношение компонентов исходного раствора на кинетику созревания плёнокообразующего золя.

### Материалы и методы исследования.

В работе в качестве прикурора – алкоксисоединения, использован этиловый эфир ортокремневой кислоты - тетраэтоксисилан.

Определяющими параметрами перехода пленкообразующего раствора золя в гель является вязкость, электропроводность и устойчивость исходного раствора. Поэтому в опытах для контроля кинетику золь-гель процесса использованы вискозиметрические, кондуктометрические и газохроматографические методы анализа.

### Результаты и обсуждение

В ходе экспериментов изучено влияние состава и соотношения компонентов исходного раствора на кинетику созревания золя. При этом молярные соотношения исходных компонентов варьировались в следующих интервалах: Si(OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub>:H<sub>2</sub>O: ROH:HX = (1-4):(1-40):(1-45):(0,01-0,3), где ROH – простые спирты, HX – кислота.

Для выяснение механизма процесса пленкообразования и получения селективных газочувствительных пленок изучено влияние соотношения

ТЭОС:спирта в растворе от 1:1 до 1:45.

В результате проведенных исследований установлена возможность использования алифатических спиртов в качестве растворителя в процессе синтеза полупроводниковых газочувствительных пленок. В связи с учетом устойчивости раствора и растворимости компонентов гидролизата в качестве растворителя процесса синтеза газочувствительных пленок был выбран этанол. При этом оптимальное соотношение ТЭОС:этанол=1:30, обеспечивает наиболее высокую растворимость компонентов и устойчивость раствора.

Исследование влияния воды на устойчивость, электропроводность, плотность и вязкость золя в процессе синтеза газочувствительных пленок проводили на этанольном растворе при молярном соотношении ТЭОС:Н<sub>2</sub>О от 1:1 до 1:40. Результаты экспериментов приведены в таблице 2.

Таблица 2.

**ВЛИЯНИЕ КОЛИЧЕСТВА ВОДЫ В РАСТВОРЕ НА ЕГО ПЛОТНОСТЬ,  
ВЯЗКОСТЬ И СРОК СТАБИЛЬНОСТИ.**

№ п/п	Состав раствора, моль				Свойства раствора		
	ТЭОС	H <sub>2</sub> O	HCl	спирт	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Электропроводность, мСм.	Вязкость, сПа
1	1	1	0,05	30	0,8248	9,6	1,7
3	1	4	0,05	30	0,8295	10,0	1,8
5	1	10	0,05	30	0,8365	10,4	2,1
7	1	20	0,05	30	0,8578	16,5	2,3
9	1	30	0,05	30	0,8631	18,5	2,4
11	1	40	0,05	30	0,8684	20,0	2,6

Как следует из данных приведенных в таблице 2, с увеличением количества H<sub>2</sub>O возрастает вязкость раствора. При содержании воды в растворе от 1 до 40 моль, т.е. при соотношении H<sub>2</sub>O/ТЭОС до 40 увеличивает вязкость в 1,53 раза. Из результатов проведенных экспериментов следует, что при соотношении H<sub>2</sub>O/ТЭОС=20 данный раствор можно использовать для изготовления газочувствительной пленок в течение 445 часов.

Влияние содержания ТЭОС в гидролизате на устойчивость пленкообразующего золя изучали в интервале его содержания в растворе от 1 до 4 моль. Динамика изменения вязкости от продолжительности опыта при различных

содержаниях ТЭОС в растворе представлена на рис. 5. Как видно из данных рис. 5, наиболее высокой стабильностью характеризуются растворы, приготовленные при соотношении компонентов (в моль): 1-ТЭОС : 20-H<sub>2</sub>O:30-спирт:0,05-HCl.

Полученные результаты показали снижение периода гелеобразования с ростом концентрации ТЭОС в растворе. Результаты экспериментов подтверждают целесообразность проведения синтеза газочувствительных пленок при низких концентрациях ТЭОС в реакционном растворе. Использование последнего позволяет получить однородный гель с большим сроком стабильности и без признаков седиментации.

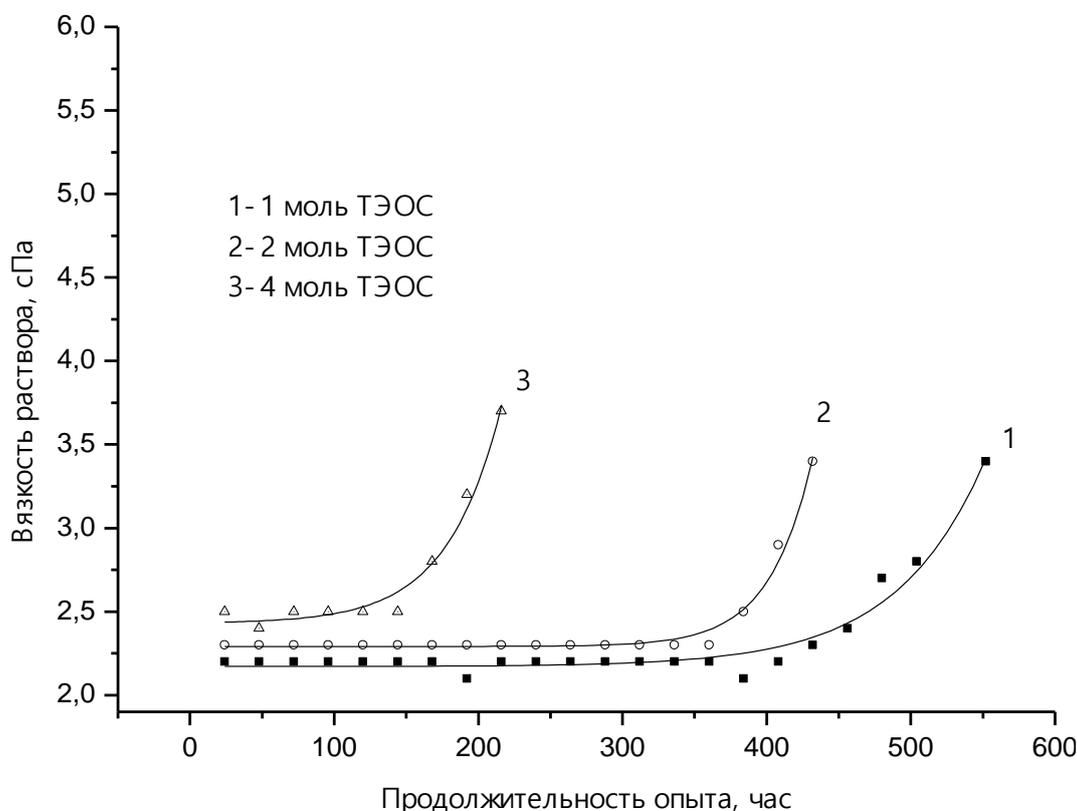


рис. 5. График зависимости вязкости от продолжительности опыта при различных содержаниях ТЭОС в растворе: ТЭОС:H<sub>2</sub>O:этанол:HCl.  
(Содержание в растворе: H<sub>2</sub>O-20 моль; этанол-30 моль; HCl-0,05 моль).

Влияние pH среды на устойчивость, плотность, электропроводность, вязкость и степень гидролиза изучали в диапазоне ТЭОС:HCl равной от

1:0,01 моль до 1:0,30 моль. Результаты опытов приведены в таблице 4.

Таблица 4.

**ЗАВИСИМОСТЬ СВОЙСТВ РАСТВОРА ОТ СОДЕРЖАНИЯ HCl В СМЕСИ: ТЭОС:H<sub>2</sub>O:  
СПИРТ:HCl (СОДЕРЖАНИЕ В ИСХОДНОМ ГИДРОЛИЗАТЕ ТЭОС-1МОЛЬ,  
H<sub>2</sub>O-20 МОЛЬ, СПИРТ-30 МОЛЬ).**

№ п/п	Состав раствора					Свойства раствора				
	ТЭОС, моль	H <sub>2</sub> O, моль	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH, моль	HCl в молях на 1 моль ТЭОС	HCl в молях на 1 л раствора	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Вязкость, сПа	Устойчивость, сутки	Степень гидролиза, %	Степень конденсации, %
1	1	20	30	0,01	0,0029	0,8544	2,4	17,5	96	100
2	1	20	30	0,05	0,0146	0,8571	2,4	20,5	96	100
3	1	20	30	0,10	0,0293	0,8601	2,5	8,0	98	97
4	1	20	30	0,20	0,0586	0,8642	2,5	7,0	97	82
5	1	20	30	0,30	0,0878	0,8671	2,6	6,0	98	72

В изученном диапазоне концентраций с повышением концентрации кислоты в растворе увеличивается его плотность от 0,8544 до 0,8671 г/см<sup>3</sup>. Аналогично изменяется вязкости раствора. В интервале соотношения ТЭОС: HCl от 1:0,01 до 1:0,30 моль вязкость раствора увеличивается на от 2,4 до 2,6 сПа).

Из результатов опытов следует, что с увеличением концентрации кислоты в растворе уменьшается устойчивость раствора. Данная зависимость особенно заметна при значениях ТЭОС:HCl ≥ 0,1. При ТЭОС:HCl = 1:0,30 срок стабильности раствора всего 96 часов.

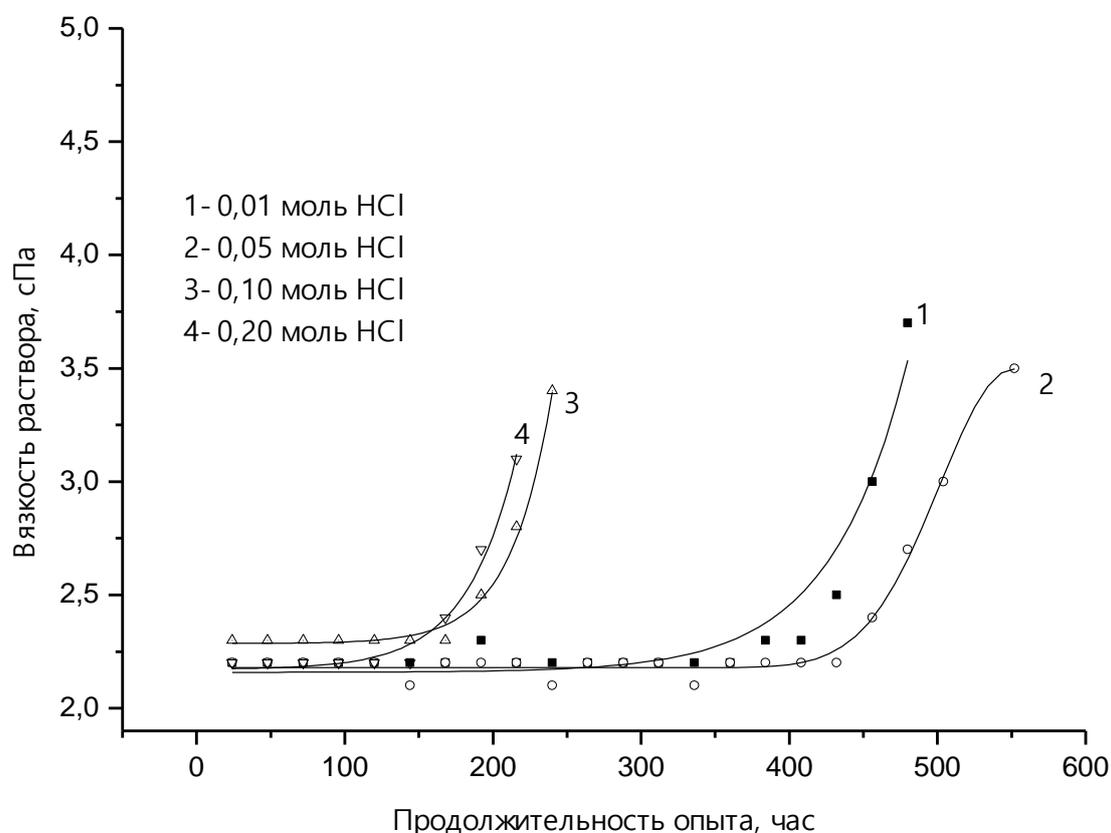


рис. 6. График зависимости вязкости от продолжительности опыта при различных содержаниях HCl в растворе: ТЭОС:H<sub>2</sub>O:этанол:HCl.  
(Содержание в растворе: ТЭОС-1 H<sub>2</sub>O-20 моль; этанол-30 моль).

Наиболее оптимальным для получения газочувствительных пленок является соотношение

ТЭОС:НС1=0,05 (см. график 2, рисунка 6.) при котором обеспечивается 450 часовая устойчивость раствора.

Таким образом, наиболее важным параметром золь-гель синтеза газочувствительных пленок, является рН среды. При значениях ТЭОС/НС1 $\geq$ 20,0 гидролиз разбавленных растворов ТЭОС в спиртовой среде при комнатной температуре (20 °С) протекает долго. Следовательно, устойчивые золи легче всего получать при низких концентрациях НС1 и в разбавленных растворах, так как в таких системах малы скорость образования частиц и их рост (из-за небольших степеней пресыщения и из-за медленной диффузии фазообразующего вещества к поверхности зародыша).

#### **Заключение.**

Таким образом, в результате проведенных исследований влияния состава и соотношения компонентов пленкообразующих растворов на кинетику процесса гелеобразования исходного золя подобраны оптимальные параметры, обеспечивающие высокую устойчивость исходного

раствора. Установлено, что наибольшей устойчивостью обладают растворы, полученные при соотношении исходных компонентов ТЭОС:Н<sub>2</sub>О:спирт:НС1=1:20:30:0,05. Раствор, полученный при оптимальных условиях, устойчив от 18 до 18,5 суток.

#### **Список использованной литературы:**

1. Мясников И.А., Сухарев В.Я., Куприянов Л.Ю., Завьялов С.А. Полупроводниковые сенсоры в физико-химических исследованиях // М.: Наука, 1991. - 327с.
2. Бубнов Ю.З., Шилова О.А. Наноразмерные стекловидные пленки многофункционального назначения в технологии изготовления полупроводниковых газовых сенсоров // Технологии приборостроения. 2003. №3 (7). С. 60-71.
3. Абдурахманов И.Э. Создание селективных газовых сенсоров аммиака на основе наноматериалов. LAP LAMBERT Academic Publishing. Beau Bassin (Германия) 2018. P.121.

УДК: 743.565.83

---

### **СИНТЕЗ И МОЛЕКУЛЯРНАЯ И КРИСТАЛЛИЧЕСКАЯ СТРУКТУРА ПАРА – ОКСИБЕНЗОАТА Yb(III).**

---

***Касумова Самира Али кызы.**  
Докторант Гянджинского филиала  
Национальная АН Азербайдана*

### **SYNTHESIS OF MOLECULAR AND CRYSTALLINE STRUCTURE OF PARA- HYDROXYBENZOATE Yb (III).**

***Kasımova Samira Ali kızı**  
Doctoral student of the Ganja branch of the  
National Academy of Sciences of the Republic of Azerbaijan*

#### **АННОТАЦИЯ**

Синтезировано новые комплекс пара-оксибензойной кислоты с Yb (III), - получена монокристаллы для рентгенструктурного анализа и расшифрована молекулярная и кристаллического структура нового комплекса. Установлено что, металл координируется килородами карбоксильной группы монодентадно, бидентатно и бидентатно-мостикова типа.

#### **ABSTRACT**

New para-oxybenzoic acid complex with Yb (III) was synthesized, single crystals were obtained for X-ray diffraction analysis and the molecular and crystalline structure of the new complex was deciphered. It has been established that the metal is coordinated by the carboxyl group kilorods monodentadno, bidentate and bidentate-bridge type.

**Ключевые слова:** пара-оксибензойной кислота, рентгенструктурный анализ, комплекс Yb (III), монодентадный, бидентатный, бидентатно-мостиковые связи.

**Key words:** para-oxybenzoic acid, X-ray analiz, complex Yb (III), monodentadno, bidentate and bidentate-bridge.

Пара – оксибензойная кислота -4 –НО-С<sub>6</sub>Н<sub>4</sub>СООН встречается в почвах [1], в морской воде[2] и различных органах растений: листьях и ягодах винограда [3], сахарной свекле [4], томатах [5]. Биологическая активность пара – оксибензойной кислоты изучено достаточно:

синтез стероидов в ткани головного мозга, стимулирует реакции секреции кислоты желудка на тетрачастрин и повышает базальную секрецию [6].

Строение пара – оксибензойной кислоты установлено при расшифровке структуры [7]. Монокристаллы п –НО-С<sub>6</sub>Н<sub>4</sub>СООН моноклинные: