

ӨОЖ 537.52

ГТАХР 29.27.43

<https://doi.org/10.55452/1998-6688-2023-20-2-6-12>

**Жарылгапов Б.<sup>1\*</sup>, Оразбаев С.А.<sup>1</sup>**

<sup>1</sup>Әл-Фараби атындағы Қазақ Ұлттық университеті, 050000, Алматы қ., Қазақстан

\*E-mail: zharylgapovberdibek@gmail.com

## **ЖЖ РАЗРЯД НЕГІЗІНДЕГІ PECVD ӘДІСІ АРҚЫЛЫ НАНОБӨЛШЕКТЕРДІ СИНТЕЗДЕУ**

**Аңдатпа.** Бұл ғылыми мақала вакуумдық қондырғыда төменгі қысымдағы жоғары жиілікті (жж) разрядты плазмадағы көміртегі нанобөлшектерінің синтезін зерттеу нәтижелерін ұсынады. Көміртекті нанобөлшектердің өздігінен орын ауыстыру кернеуі, температура және разряд қуаты тәрізді плазманың әр түрлі параметрлерінде өсуі экспериментті түрде зерттелінді. Эксперимент 0.5–1.1 мбар қысым диапазонында және 6–20 Вт қуат шамаларында жүргізілді. Зерттеу нәтижелері көміртегі нанобөлшектердің синтезделу уақыты, соның ішінде олардың түзілуі мен өсуі плазма параметрлеріне байланысты екенін көрсетті. Плазманың параметрлерінің (температура, қысым, қуат және т.б) өзгерісі нанобөлшектердің өсуі мен қалыптасу процестерін айтарлықтай өзгерте алатыны экспериментте тіркелді. Плазма температурасының жоғарылауы көміртегі нанобөлшектерінің пайда болу уақытының ұлғаюына алып келуі бұл жұмыстың маңызды қорытындыларының бірі болып табылады. Сондай-ақ пайда болған нанобөлшектердің қасиеті разряд қуатына, разряд қысымына және разряд қуатының температураға тәуелділігі графиктері алынды. Алынған нәтижелер плазмалық ортадағы көміртегі нанобөлшектердің синтез процесін түсіну және бақылау үшін құнды ақпарат беретіні сөзсіз. Сонымен қатар эксперименттік нәтижелер наноэлектроника және катализ салаларында, сондай-ақ әртүрлі технологиялық қосымшалар үшін өте маңызды ақпарат болып табылады.

**Тірек сөздер:** плазма, нанобөлшектер, ЖЖ разряд, PECVD.

**Zharylgapov B.<sup>1\*</sup>, Orazbayev S.A.<sup>1</sup>**

Al-Farabi Kazakh National University, 050000, Almaty, Kazakhstan

\*E-mail: zharylgapovberdibek@gmail.com

## **NANOPARTICLE SYNTHESIS BY THE PECVD METHOD BASED ON RF DISCHARGE**

**Abstract.** This scientific paper presents the results of the study of the synthesis of carbon nanoparticles in radio-frequency ( RF ) discharge plasma at low pressures in a vacuum apparatus. The growth of carbon nanoparticles was studied under different plasma parameters, such as variation of self-displacement voltage, temperature, and discharge power. The experiment was performed in the pressure range of 0.5-1.1 mbarr and powers of 6-20 W. The results showed that the synthesis time of carbon nanoparticles, including their formation and growth, depends on the plasma parameters. Small changes in temperature, pressure, and plasma power can significantly change the growth and formation of nanoparticles. An important conclusion of this work is that increasing the temperature of the plasma-forming gas leads to an increase in the formation time of carbon nanoparticles. The dependences of nanoparticle growth on the discharge power, self-displacement voltage on the discharge pressure, and temperature on the discharge power were also obtained. The results obtained provide valuable information for understanding and controlling the synthesis process of carbon nanoparticles in the plasma environment. This is important for various technological applications, including nanoelectronics and catalysis.

**Key words:** plasma, nanoparticles, RF discharge, PECVD.

Жарылгапов Б.<sup>1\*</sup>, Оразбаев С.А.<sup>1</sup>

Казахский Национальный университет им. аль-Фараби, 050000, г. Алматы, Казахстан

\*E-mail: zharylgapovberdibek@gmail.com

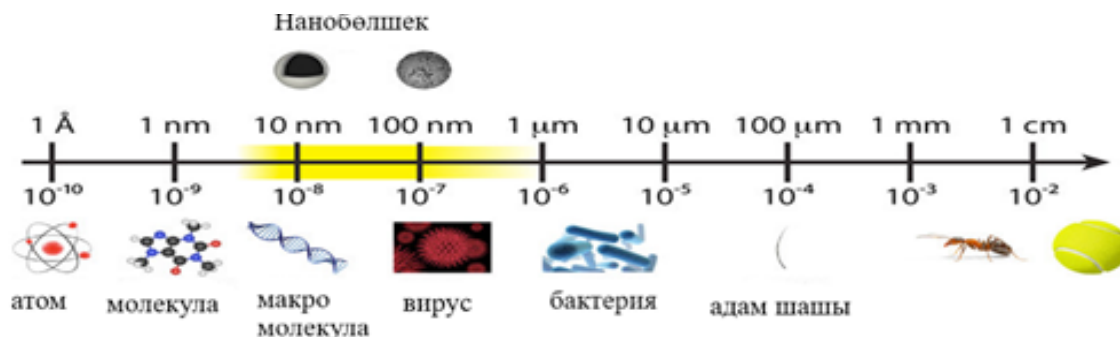
## СИНТЕЗ НАНОЧАСТИЦ МЕТОДОМ PECVD НА ОСНОВЕ ВЧ-РАЗРЯДА

**Аннотация.** Данная научная статья представляет результаты исследования синтеза углеродсодержащих наночастиц в плазме высокочастотного (ВЧ) разряда при низких давлениях в вакуумной установке. Был изучен рост углеродных наночастиц при различных параметрах плазмы, таких как изменение напряжения самосмещения, температуры и мощности разряда. Эксперимент был проведен в диапазоне давлений 0.5–1.1 мбар и мощностях 6–20 Вт. Результаты исследования показали, что время синтеза углеродных наночастиц, включая их формирование и рост, зависит от параметров плазмы. Даже незначительные изменения в температуре, давлении и мощности плазмы могут существенно изменить процессы роста и формирования наночастиц. Важным выводом данной работы является то, что повышение температуры плазмообразующего газа приводит к увеличению времени формирования углеродных наночастиц. Также были получены зависимости роста наночастиц от мощности разряда, напряжения самосмещения от давления разряда и температуры от мощности разряда. Полученные результаты предоставляют ценную информацию для понимания и контроля процесса синтеза углеродных наночастиц в плазменной среде. Это имеет важное значение для различных технологических приложений, включая области нанoeлектроники и катализа.

**Ключевые слова:** плазма, наночастицы, ВЧ-разряд, PECVD.

### Кіріспе

Нанобөлшектердің (100 нм немесе одан төменгі өлшемге ие объект түрі) қолданылу аясы электроника, медицина және косметика сияқты әр түрлі өндірістік жұмыстар мен технологияларды қамтиды. Нанобөлшектерге реальды жағдайда вирус пен шаң бөлшектерінің өлшемі тән [1-5] (сурет 1)



Сурет 1 – Нанобөлшектердің салыстырмалы өлшем диапазоны

Әр түрлі разрядтық ортадағы нанобөлшектердің қалыптасуы және оларды басқару қазіргі ғылым мен технологиядағы белсенді зерттелетін тақырыптар болып табылады. Әсіресе ЖЖ жиілікті разряд негізіндегі PECVD әдісі нанобөлшектердің пайда болу қасиеті және оларды бақылау үшін қолданылатын маңызды әдістерінің бірі болып табылады. Бұл әдісте тұндырылатын прекурсорлардың реакция жылдамдығын жеделдету үшін газдық разрядты плазма енгізіледі [7-12].

ЖЖ разрядта нанобөлшектердің пайда болуына әсер ететін негізгі факторлардың бірі температура болып табылады. Температураның жоғарылауы конденсация мен диффузия жылдамдығын арттыру арқылы нанобөлшектердің өсуіне ықпал ететіні анықталды. Бұл нәтиже қажетті өлшемдері мен қасиеттері бар нанобөлшектерді синтездеу процестерін оңтайландыру үшін өте маңызды.

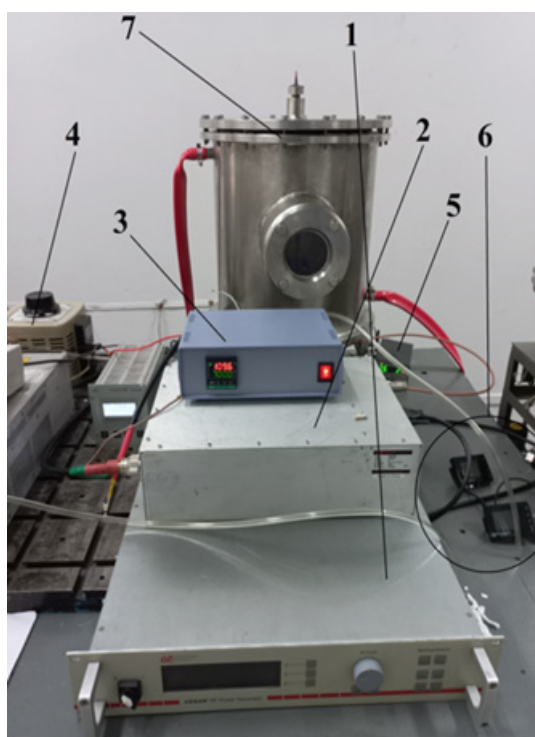
Сонымен қатар, ЖЖ разрядта нанобөлшектердің пайда болу механизмі өздігінен орын ауыстыру кернеуіне, плазма температурасына және разряд қуатына айтарлықтай тәуелді екендігі анықталды. Аталған параметрлер мен нанобөлшектердің өсу механизмдері арасындағы байланысты егжей-тегжейлі зерттеуді қажет етеді. Бақыланатын механизмдерге конденсация, коагуляция және агрегация жатады.

Осы параметрлердің оңтайлы мәндерін анықтау ЖЖ разрядында нанобөлшектердің түзілуін бақылауға және оңтайландыруға мүмкіндік береді [13-16]

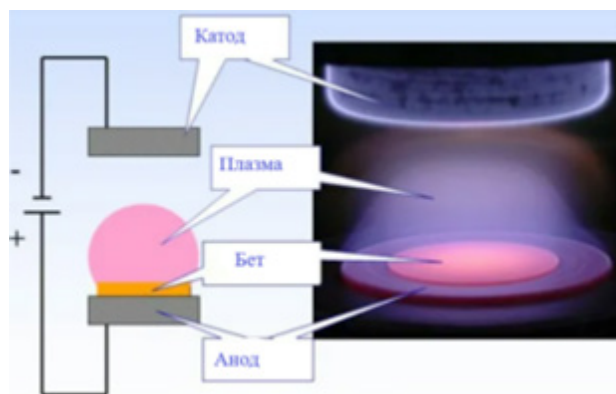
Бұл жұмыстың негізгі мақсаты ЖЖ разряд негізіндегі PECVD әдісін қолдану арқылы алынған нанобөлшектердің плазма параметрлеріне (температура, қысым және т.б) әсерлерін зерттеу.

### Материалдар және әдістер

Эксперименттік қондырғы герметикалық вакуумдық ыдыстан, газ жіберу портынан және салқындату жүйесінен тұрады. Көмертегі нанобөлшектерін синтездеу үшін иондық сәулелік тұндыру әдісі қолданылды. Генератор көмегімен енгізілетін жоғары жиілікті разряд әсерінен орта иондалады. Яғни газ молекулалары ион мен атомдарға ыдырайды. Плазмалық үдеріс негізінде атомдар мен иондар бір-бірімен коагуляцияланып, нанобөлшектер пайда болады. Зерттеу барысында нанобөлшектердің өлшемі разряд параметріне (қысым, температура, тұндыру уақыты, газ қоспасының құрамы және т.б) тәуелді екені анықталды. Плазма түзуші газ ретінде метан, аргон газы пайдаланылды. Эксперименттік қондырғы 2 суретте көрсетілген.



а)

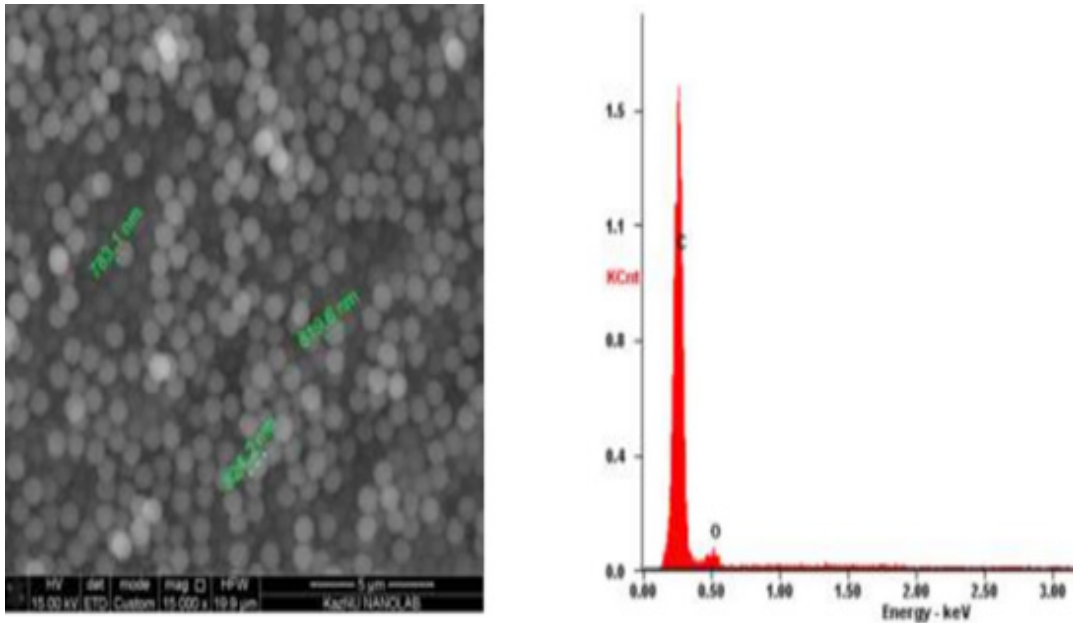


ә)

Сурет 2 – а) эксперименттік қондырғының сыртқы бейнесі. 1– ЖЖ генератор, 2 – сигнал үйлестіруші қорап, 3 – температура реттеуіш, 4 – автотрансформатор, 5 – қысым индикаторы, 6 – газ ағын реттегіш, 7 – вакуумдық ыдыс; ә) плазма түзілуінің принциптік схемасы

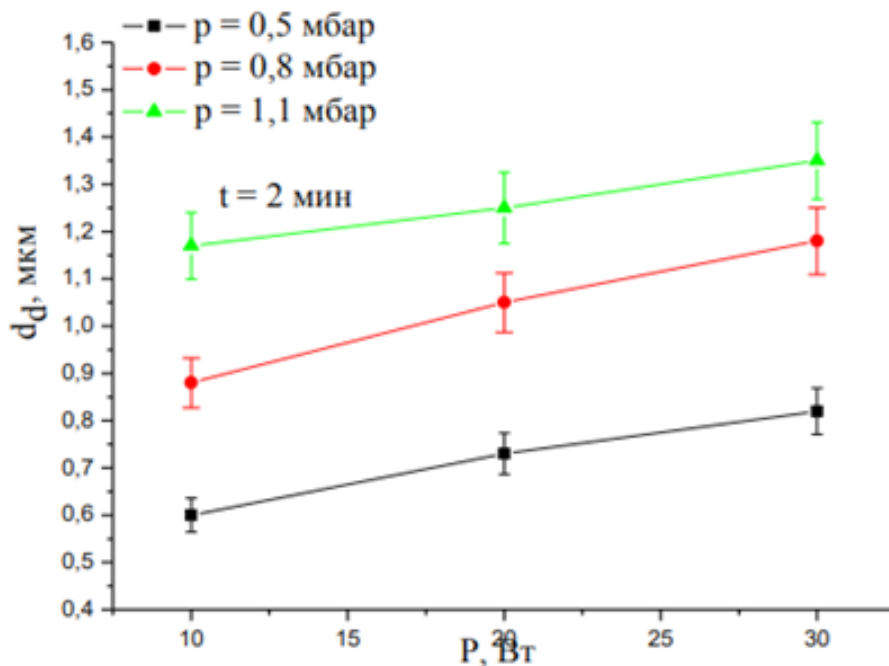
### Нәтижелер мен талқылау

Экспериментте жоғарыда талқыланған әдіс нәтижесінде алынған нанобөлшектердің құрылымдық қасиеті сканерлеуші электрондық микроскоп (СЭМ) көмегімен зерттелінді.. Сондай-ақ көміртегі бөлшектерінің пайда болатынына көз жеткізу үшін химиялық құрамы талданды. Алынған бейнелер 3 суретте көрсетілген. Келесідей эксперимент параметрлерінде жасалынды: қуат 30 Вт және орта қысымы 0.799 мбар.



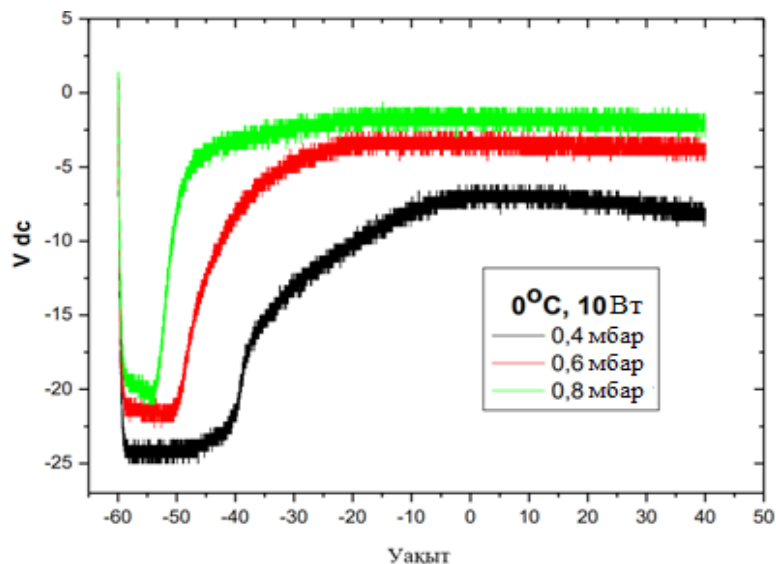
Сурет 3 – Түзілген нанобөлшектер мен оның химиялық құрамы. Эксперимент параметрлері: қуат 30 Вт және қысым 0.79 томбар

Сондай-ақ нанобөлшектердің морфологиялық қасиетін зерттеу үшін пайда болатын бөлшек өлшемінің разряд қуатына тәуелділігі зерттелінді. Графикте көрініп тұрғандай разряд қуатын арттырған сайын нанобөлшектердің өлшемі артады. Себебі қуат артқан сайын ортадағы мобильділігі жоғары электрондардың энергиясы артады. Энергияның артуы иондану жылдамдығының артуына, сәйкесінше иондардың тұндыру жылдамдығының артуына себепші. Осының нәтижесінде нанобөлшектердің өлшемінің өсуіне алып келеді. 4-суретте 3 түрлі қысым мәнінде 2 минут бойы жасалған нәтижелер көрсетілген.



Сурет 4 – Түзілген нанобөлшектердің өлшемінің қуатқа тәуелділігі

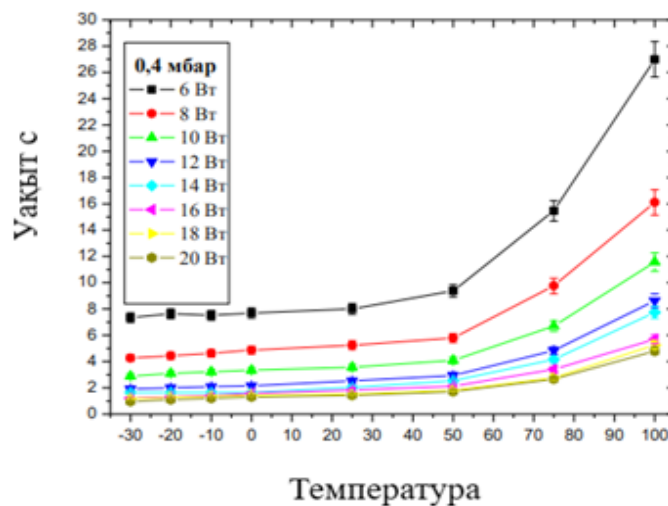
Нанобөлшектердің өсу механизмі разрядтың орын ауыстыру кернеуінің мәніне байланысты. Себебі өздігінен орын ауыстыру кернеуі плазма параметрін белгілі стабилді күйде сақтап тұрады. Сондай-ақ бұл параметр бөлшектердің қозғалғыштығын анықтайды. Яғни плазманың температурасын басқаруға мүмкіндік береді. 5 суретте өздігінен орын ауыстыру кернеуінің әртүрлі қысым мәніндегі уақытқа тәуелділігі көрсетілген.



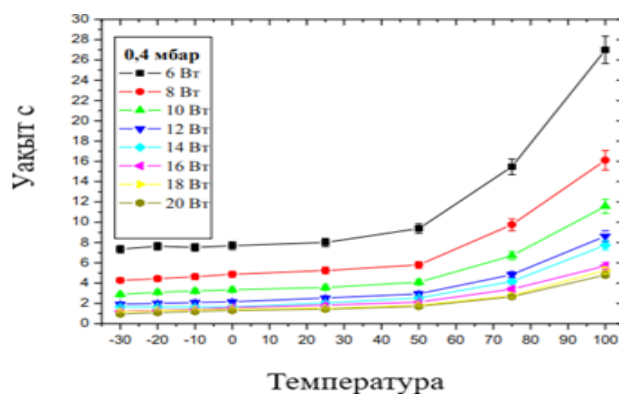
Сурет 5 – Өздігінен орын ауыстыру кернеуінің газ қысымына тәуелділігі ( $\text{Ar}+\text{CH}_4$ )

Графиктен көрініп тұрғандай разряд қуаты артқан кезде өздігінен орын ауыстыру кернеуі төмендегенін көре аламыз. Бірақ сәл уақыт мезетінде тұрақталатыны байқалады.

Экспериментте алынған нәтижелер негізінде нанобөлшектердің өсуі газ температурасына тәуелді шама екені байқалды. Өйткені температураның жоғарлауы нанобөлшектерді түзілуіне жауап беретін химиялық реакциялар жүру үрдісінің артуына алып келеді. Сондай-ақ разряд қуатын арттырған кезде ортадағы нейтрал бөлшектер, яғни атомдар мен газ молекулалары арасында соқтығысу ықтималдылығы жоғарлайды. Мұндай процесс нанобөлшектердің өлшемінің артуына алып келеді. Яғни өсу механизмі газ температурасына тәуелділігі екенін дәлелдейді. Сондай-ақ қысым шамасын арттырған кезде молекулалық қосылыстар мен прекурсорлардың құрамы жоғарылап, нанобөлшектердің қарқынды өсуін қамтамасыз етеді. Сараптай келе, нанобөлшектердің өсу механизмі температура және қысым сияқты плазма параметрлеріне (температура және қысым) тәуелділігі екені дәлелденді.



а)



ә)

Сурет 6 – Нанобөлшектердің өсу уақытының газ температурасына және разряд қуатындағы тәуелділігі

### Қорытынды

Аталған мақалада ЖЖ плазмадағы PECVD әдісінің көмегімен нанобөлшектердің өсу механизмі зерттелінді. Бөлшектердің өсу механизмі өздігінен орын ауыстыру кернеуіне, газ температурасына, қысымға және разряд қуатына тәуелді екені анықталды. Атап айтсақ разряд қуатының артуы иондардың тұндыру жылдамдығы өсуіне, өздігінен орын ауыстыру кернеуі плазма параметрінің стабилді күйде сақтап тұруына, температураның жоғарлауы нанобөлшектерді түзілуіне жауап беретін химиялық реакциялар жүру үрдісінің артуына алып келеді. Сонымен қатар экспериментте нанобөлшектерді өсіру үшін газ бен разрядтың комбинациясы негізінде оңтайлы параметрлері анықталды. Болашақта плазмадағы нанобөлшектердің өсу үдерістерін бақылау және бағалау мақсатында компьютерлік әдістер қолданылатын болады.

### References

- 1 Roco M.C. (2011) The long view of nanotechnology development: the National nanotechnology initiative at 10 years, *J. of Nanoparticle Research*, vol. 13, pp. 897–919.
- 2 Khushwant S. Yadav, Sheeba Jacob, Anil M. Pethe. (2022) Chapter 10 – Nanomaterials physics: A critical review, *Photophysics and Nanophysics in Therapeutics*.
- 3 Eric Vogel. (2007) Technology and metrology of new electronic materials and devices. *Nature Nanotechnology*, vol. 2, pp. 25–32.
- 4 Bayda S., Adeel M., Tuccinardi T., Cordani M. & Rizzolio F. (2019) The History of Nanoscience and Nanotechnology: From Chemical-Physical Applications to Nanomedicine. *Molecules*, 25(1), 112. <https://doi.org/doi:10.3390/molecules25010112>.
- 5 Gogotsi Y. (2014). What Nano Can Do for Energy Storage. *ACS Nano*, 8(6), 5369–5371. <https://doi.org/doi:10.1021/nn503164x>.
- 6 Rajput N.S. & Luo X. (2015) FIB Micro-/Nano-fabrication, *Micromanufacturing Engineering and Technology*, 61–80. <https://doi.org/doi:10.1016/b978-0-323-31149-6.00003-7>.
- 7 Rohkamm E., Spemann D., Scholze F. & Frost F. (2021) Characterization of an RF excited broad beam ion source operating with inert gases, *Journal of Applied Physics*, 129(22), 223305. <https://doi.org/doi:10.1063/5.0052758>.
- 8 Weiser M. (2009). Ion beam figuring for lithography optics. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 267(8-9), 1390–1393. <https://doi.org/doi:10.1016/j.nimb.2009.01.051>.
- 9 Sobolewski M.A., J. K. Olthoff and Y. Wang. (1999) Ion energy distributions and sheath voltages in a radio-frequency-biased, inductively coupled, high-density plasma reactor, *J. Appl. Phys.* 85, 3966–3975.
- 10 Woodworth J.R., M.E. Riley, D.C. Meister, B.P. Aragon, M.S. Le and H. H. Sawin. (1996) Ion energy and angular distributions in inductively coupled radio frequency discharges in argon, *J. Appl. Phys.* 80, pp.1304–1311.
- 11 Chevolleau T. and Fukarek W. (2000) Ion flux, ion energy distribution and neutral density in an inductively coupled argon discharge, *Plasma Sources Sci. Technol.* 9, pp. 568–573.
- 12 Wen D.-Q., W. Liu, F. Gao, M.A. Lieberman and Y.-N. Wang. (2016) A hybrid model of radio frequency biased inductively coupled plasma discharges: Description of model and experimental validation in argon, *Plasma Sources Sci. Technol.* 25, 045009.

13 Orazbayev S.A., Henault M., Ramazanov T.S., Boufendi L., Batryshev D.G. & Gabdullin M.T. (2019) Influence of Gas Temperature on Nucleation and Growth of Dust Nanoparticles in RF Plasma. IEEE Transactions on Plasma Science, 1–5. <https://doi.org/doi:10.1109/tps.2019.2912805>.

14 Lin J., Orazbayev S., Hénault M., Lecas T., Takahashi K. & Boufendi L. (2017) Effects of gas temperature, pressure, and discharge power on nucleation time of nano-particles in low pressure C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>/Ar RF plasmas, Journal of Applied Physics, 122(16), 163302. <https://doi.org/doi:10.1063/1.5007951>.

15 Beckers J., Stoffels W.W. & Kroesen G.M.W. (2009) Temperature dependence of nucleation and growth of nanoparticles in low pressure Ar/CH<sub>4</sub>RF discharges, Journal of Physics D: Applied Physics, 42(15), pp. 155-206. <https://doi.org/doi:10.1088/0022-3727/42/15/155206>.

16 Kovacevic E., Berndt J., Strunskus T. & Boufendi L. (2012) Size dependent characteristics of plasma synthesized carbonaceous nanoparticles, Journal of Applied Physics, 112(1), 013303. <https://doi.org/doi:10.1063/1.4731751>.

### Авторлар туралы мәліметтер

#### Жарылганов Бердібек (корреспонденция авторы)

Әл-Фараби атындағы Қазақ Ұлттық университеті, Әл-Фараби к-сі, 71, Алматы қ., 050000, Қазақстан

ORCID ID 0009-0001-1692-2427

E-mail: zharylgapovberdibek@gmail.com

#### Оразбаев Саги

Әл-Фараби атындағы Қазақ Ұлттық университеті, Әл-Фараби к-сі, 71, Алматы қ., 050000, Қазақстан

ORCID ID 0000-0002-7286-9990

E-mail: sagi.orazbayev@gmail.com

### Информация об авторах

#### Жарылганов Бердібек (автор для корреспонденции)

Казахский Национальный университет им. аль-Фараби, ул. Аль-Фараби, 71, г. Алматы, 050000, Казахстан

ORCID ID 0009-0001-1692-2427

E-mail: zharylgapovberdibek@gmail.com

#### Оразбаев Саги

Казахский Национальный университет им. аль-Фараби, ул. Аль-Фараби, 71, г. Алматы, 050000, Казахстан

ORCID ID 0000-0002-7286-9990

E-mail: sagi.orazbayev@gmail.com

### Information about authors

#### Zharylgapov Berdibek (corresponding author)

Al-Farabi Kazakh National University, Al-Farabi Street, 71, Almaty, 050000, Kazakhstan

ORCID ID 0009-0001-1692-2427

E-mail: zharylgapovberdibek@gmail.com

#### Orazbayev Sagi

Al-Farabi Kazakh National University, Al-Farabi Street, 71, Almaty, 050000, Kazakhstan

ORCID ID 0000-0002-7286-9990

E-mail: sagi.orazbayev@gmail.com