

## АННОТАЦИЯ

6D060600 – Химия мамандығы бойынша философия докторы (PhD) дәрежесін алу үшін диссертация

Кайкенов Даулетхан Асанович

«Сілтілік-жер, сілтілік, өтпелі металдардың және сирек кездесетін элементтердің аралас тотықтарының негізінде жаңа бейорганикалық қосылыстарды синтездеу және электрофизикалық қасиеттерін зерттеу».

Диссертация жаңа материалдардың электрофизикалық қасиеттерін синтездеу және зерттеуге арналған - кобальт, темір, РЭЭ, сілтілі және сілтілі жер металдарының күрделі оксидтері.

Керамикалық технология бойынша қатты фазалық синтездеу жолымен кешенді оксидтер алынған, фазалық құрамы рентгендік дифракция әдісімен орнатылып, кристалдық тордың параметрлері және күтілетін фазалық құрамы параметрлерді ауыстыруды ескере отырып анықталды. Температураның өзгеруімен электрохимиялық импеданс әдісімен өткізгіштігінің температуралық тәуелділіктерін өлшеу жүргізілді.

Жұмыста негізгі физика-химиялық әдістер, рентген фазасы және рентгендік талдау, электрохимиялық импеданс әдісі және электр өткізгіштігінің температуралық тәуелділігін өлшеу әдістері пайдаланылды.

### **Зерттеу тақырыбының өзектілігі**

Химия, химиялық технология және материалтанудың негізгі міндеттерінің бірі жаңа қосылыстарды іздестіру және олардың микроэлектроника және ғылымды қажет ететін технология саласында қолдануға болатын химиялық және физика-химиялық қасиеттерін зерттеу болып табылады.

Перспективалы объектілер теориялық және практикалық тұрғыда өтпелі металл оксидтері мен  $ABX_3$  түріндегі сирек жер элементтеріне перовскит құрылымымен немесе оған жақын орналасқан кешенді оксидтік қосылыстар деп аталуы керек. Оларға феррит пен кобальтит және олардың қатты сілтілерін сілтілік-жер элементтерінің оксидтері кіреді. Қазіргі уақытта мұндай қосылыстар әртүрлі салаларда кең қолданысқа ие болды, өйткені көптеген қызықты қасиеттер бар. Жоғары балқу нүктелері, кең температуралық диапазондағы жоғары электрөткізгіштігі, электрондық өткізгіштігі, магнитті және суперөткізгіш қасиеттері, қатты электролиттермен үйлесімділігі. Лантанды кобальтит цирконий диоксидінің негізіндегі жоғары температуралы отын элементтерінде шағын поляризациялық электрод ретінде пайдаланылған, ал катализатор ретінде – автомобильдердің газдардағы СО тотығу кезінде платина алмастырады.

Жад құрылғыларында және магнитофотикалық құрылғыларда қолданылатын перспективалық материалдар цилиндрлік магниттік аймақтары бар феррит болып табылады. Бұдан басқа магнитті қатты материалдар ретінде,

мысалы, барий, стронций және т.б. ферриттері қолданылады. тұрақты магниттер.

Е.А.Бөкетов атындағы ҚарМУ химия факультетінің ғалымдары оксидтер синтезі және рентгендік дифракция әдістерімен құрылымды зерттеу және олардың термодинамикалық және электрофизикалық қасиеттерін зерттеу бойынша эксперименталды материалдар жинақтады. Бұл зерттеу кристалды және дефект құрылымы бар жаңа жаңа кешенді оксидтерді синтездеуге бағытталған бірқатар жұмыстардың логикалық жалғасы болды, оларды түрлі техникалық құрылғыларда қолдану үшін алдын-ала бағдарламаланған қасиеттері.

**Жұмыстың мақсаты** Жаңа материалдардың электрофизикалық қасиеттерін синтездеу және зерттеу - кобальт, темір, РЭЭ, сілтілі және сілтілі жер металдарының күрделі оксидтері.

Мақсатқа байланысты жұмыста келесі міндеттер шешілді:

- жаңа қосылыстарды синтездеу технологиясын жасау;
- рентгендік дифракция және кристалдық құрылымдар арқылы фазалық құрамды құру, ұнтақ дифракциясының үлгілерін көрсету, трансляциялық симметрияны анықтау, кристалдық тордың параметрлері;
- жаңа қосылыстардың электр өткізгіштігінің температуралық тәуелділігін өлшеу;
- электрохимиялық импеданс әдісімен жаңа қосылыстардың электр өткізгіштігін зерттеу.

**Зерттеу объектілері:** сложные оксиды состава  $\text{LnM}^{\text{II}}\text{CoO}_{3,5}$  ( $\text{Ln} - \text{La, Gd, Tb, Er, Yb, Me}^{\text{II}} - \text{Mg, Ca, Sr, Ba}$ ) және  $\text{Ln}_2\text{M}^{\text{I}}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  ( $\text{Ln} - \text{La, Gd, Tb, Er, Yb, M}^{\text{I}} - \text{Li, Na, K}$ ).

**Зерттеу нысаны**  $\text{LnM}^{\text{II}}\text{CoO}_{3,5}$  ( $\text{Ln} - \text{La, Gd, Tb, Er, Yb, Me}^{\text{II}} - \text{Mg, Ca, Sr, Ba}$ ) және  $\text{Ln}_2\text{M}^{\text{I}}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  ( $\text{Ln} - \text{La, Gd, Tb, Er, Yb, M}^{\text{I}} - \text{Li, Na, K}$ ) құрамындағы күрделі оксидтердің кристалды құрылымы болып табылады, олардың ақаулы құрылымы мен электр өткізгіштігі.

**Зерттеудің ғылыми жаңалығы.** Жұмыста алғаш рет:

Синтезделген  $\text{LnM}^{\text{II}}\text{CoO}_{3,5}$  ( $\text{Ln} - \text{La, Gd, Tb, Er, Yb, Me}^{\text{II}} - \text{Mg, Ca, Sr, Ba}$ ) және  $\text{Ln}_2\text{M}^{\text{I}}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  ( $\text{Ln} - \text{La, Gd, Tb, Er, Yb, M}^{\text{I}} - \text{Li, Na, K}$ );

- жаңа қосылыстардың кристалдық торларының симметриялары мен параметрлері белгіленді;
- Жаңа қосылыстардың электр өткізгіштігінің жылулық тәуелділігі зерттелді;
- электр өткізгіштігінің активациялау энергиясы анықталды.

**Диссертациялық жұмыстың ҒЗЖ жоспары және мемлекеттік бағдарламалармен байланысы**

Диссертациялық жұмыс «Физика-химиялық зерттеу әдістері» инженерлік бейіндегі зертханада жүргізілді. Қазақстан Республикасының Білім және ғылым министрлігінің гидрогеология бойынша ғылыми жобасының шеңберінде 2015-2017 жылдарға арналған «Сутегі энергиясында пайдаланылатын қатты оксидті отын элементтеріне арналған жаңа материалдарды синтездеу технологиясын және физико-химиялық

зерттеулерін әзірлеу» тақырыбында (Мемлекеттік тіркеу нөмірі 0115RK00932).

**Зерттеудің теориялық маңызы.** Полипропиленгликольмалеинаттың

Аралас электронды, оттегі және иондық өткізгіштігі бар қосымша оксидтік материалдар қазіргі уақытта көптеген каталитикалық және магниттік жүйелерде, энергияны айырбастау құрылғыларында маңызды рөл атқарады. Осы көпфункционалды материалдардың ішінде ең күрделі оксидтер А учаскелеріндегі лантаноид бар  $ABO_3$  перовскит құрылымымен және В алаңдарындағы 3 атомдарымен қолданылады. Осы кластағы ең перспективалы материалдардың бірі кобальт пен лантанға негізделген перовскит құрылымымен күрделі оксидтер.

Бұл қосылыстар қолдану ауқымы тұрғысынан да, зерттеушілер тарапынан да назар аударуға абсолюттік көшбасшы болып табылады. Жақында А-lanthanide, В-Fe, Со-мен бірге  $ABaB_2O_{6-\delta}$  қосарланған перовскиты қарқындылығы жоғары зерттелді. Осы уақытқа дейін, негізінен, сирек жер элементтері сілтілік жер металдарымен, негізінен стронциймен алмастырылған, перовскиттарға бағытталған. А сублатидасының иондарының бір бөлігі изоморфалық түрде ауыстырылған жаңа перовскитке ұқсас фазалардың жүйелі зерттелуі іс жүзінде орындалмады. Алайда мұндай изоморфты ауыстыру осы қосылыстардың магниттік, электрлік және каталитикалық қасиеттері сияқты барлық нысаналы сипаттамаларының дерлік өзгеруіне әкеледі. Мұндай күрделі оксидтер әлі күнге дейін тек құрылымдық және қолданбалы аспектілерде зерттелген, сондықтан дефект құрылымы мен электр өткізгіштігі сияқты негізгі қасиеттер туралы ақпарат өте шектеулі. Осыған байланысты, А сублатисімен бірге қолданылатын перовскиттардың кешенді жүйелі зерттелуі өте өзекті мәселе болып табылады.

**Зерттеудің практикалық маңызы.** Перовскит құрылымы бар кешенді оксидтер электрохимиялық, каталитикалық және магниттік құрылғыны құру үшін перспективті материалдар ретінде бүкіл әлем бойынша көптеген зерттеушілердің назарын аударады. Қазіргі уақытта  $ABO_3$  және  $An + 1BnO_3n + 1$  оксидтерінің құрамы мен қасиеттері арасындағы өзара байланыс бойынша көптеген зерттеулер жүргізілді, онда А - REE катиондары, Ca, Sr, Ba катиондары; және В - өтпелі металл катиондары. Осындай оксидтерді қолданудың перспективалы саласы қатты оксидті отындық ұяшықта (SOFC) катодты материалдар болып табылады. Алайда, мысалы,  $La_{1-x}Sr_xFe_{1-y}Co_yO_{3-\delta}$  ( $0.4 \leq x \leq 1$  және  $0.5 \leq y \leq 1$ ) сияқты үздік электрокатальды сипаттамалары бар материалдар химиялық тұрақтылықтың төмендігі және термиялық кеңею коэффициенті төмен, бұл оны мүмкін емес етеді қатты оксидті отын жасушасының катодты материалы ретінде қолдану. Бұл жұмыстың мақсаты ТОТЭ-ның катодты материалдарының синтезі мен зерттелуі болып табылады - кобальт пен темірдің күрделі оксидтері.

**Автордың жеке үлесі** Автордың жеке үлесі - эксперименталды жұмыстың тікелей орындалуы, алынған нәтижелерді талдау, жалпылау және түсіндіру және олардың теориялық негіздемесі, анализіне қатысты.

**Басылымдар.** Диссертацияның негізгі ережелері халықаралық ғылыми, соның ішінде халықаралық және өңірлік конференциялар, симпозиумдар және съездер ұсынылды ЕА Бөкетов 90 жылдығына арналған ғылыми-тәжірибелік практикалық конференция – КарМУ Бөкетов атындағы (27-28 наурыз), Қарағанды, 2015. Халықаралық ғылыми конференция Қазақ КСР, КСРО Мемлекеттік сыйлығының лауреаты, Е.А. лауреаты академик 90 жылдығына арналған Букетова атындағы химия-металлургиялық институты. Дж. Абишева. Қарағанды, 2015; Академик А. Сағынов (10-11 желтоқсан 2015) 100 жылдығына арналған (№7 Сағынов оқып), Қарағанды - Халықаралық ғылыми-тәжірибелік конференция «Ұлт жоспарын іске асыру негізі ғылым, білім және өндірістің интеграциясы» Теориялық және эксперименталды химия: VI Халықаралық ғылыми конференцияның тезистері. (2017 жылғы 15-17 маусым).

**Нәтижелері мен қорытындылар сенімділігі,** толықтыратын техникасын (Рентгенқұрылымдық әдістері, электрлік кедергі және электрохимиялық импеданс температураға тәуелділігін өлшеу әдісі) жиынтығын пайдалана отырып, әр түрлі әдістермен алынған эксперименттік нәтижелерін жақсы корреляция растады; олардың ішкі қайшылығы нәтижелерін сандық өңдеудің заманауи әдістерін қолдану. нәтижелері мен қорытындылар сенімділігі мен негізділігі, сондай-ақ, әдебиетте сирек белгілі олардың салыстырмалы талдау ғылыми-зерттеу және дамыту нәтижелерін растады.

**Жарияланымдар.** Негізгі ғылыми-зерттеу нәтижелері Білім саласындағы бақылау комитеті мен ҚР БҒМ Ғылым ұсынған ұлттық мамандандырылған журналдарда 3 мақала, оның ішінде 10 ғылыми жұмыстың авторы, бірлескен авторлықта ұсынылған, халықаралық ғылыми журналда 2 мақала Thomson Reuters деректер базасын физика (орыс журналы енгізілген Химия), сондай-ақ ұлттық және халықаралық ғылыми конференциялар, симпозиумдар және съездер, және өнертабысқа патент беруге жасасу кезінде 6 презентациялар материалдар мен тезистер. «Сирекжерлік сілтілік жер және ауспалы металдардың жалпы формуласы  $LnMeCoO_{3,5}$  перовскит тәріздес оксидтерін флу тәсілі, мұнда Ln – сирекжер металл, Me – сілтілік жер металл» Өтінім №2015 / 1262.1

**Диссертация құрылымы.** Диссертациялық жұмыс жазылған мәтіннің 107 бетінде келтірілген және кіріспе, 3 бөлім, қорытынды, 22 кесте, 58 сурет, 101 атаулар мен қосымшалардан алынған көздердің тізімі.