FIZIKA-TEXNIKA

UDK: 53.023 DOI: 10.56292/SJFSU/vol29_iss5/a57

VODOROD ADSORBSIYASIDA GRAFENDAGI NUQSONLARNING ROLI

РОЛЬ ДЕФЕКТОВ ГРАФЕНА В АДСОРБЦИИ ВОДОРОДА

ROLE OF GRAPHENE DEFECTS IN HYDROGEN ADSORPTION

[1]O‘ljayev O‘tkir Boymamatovich
[1]O‘zbekiston Respublikasi Fanlar Akademiyasi, Ion-Plazma va Lazer Texnologiyalari Instituti, tayanch doktorant

[2]Mehmonov Kamoliddin
[2]O‘zbekiston Respublikasi Fanlar Akademiyasi, Ion-Plazma va Lazer Texnologiyalari Instituti, tayanch doktorant

[3]Yadgarov Ishmumin Djabbarovich
[3]O‘zbekiston Respublikasi Fanlar Akademiyasi, Ion-Plazma va Lazer Texnologiyalari Instituti, f-m.f.d, professor

[4]Xalilov Umedjon Boymamatovich
[4]O‘zbekiston Respublikasi Fanlar Akademiyasi, Ion-Plazma va Lazer Texnologiyalari Instituti, f-m.f.d, yetakchi ilmiy xodim

Annotatsiya

Hozirgi vaqtda uglerod asosidagi nanomateriallar yordamida vodorodni saqlash bo‘yicha tadqiqotlar qiziqish uyg‘otmoqda. Shunga qaramay, grafen sirtlarining saqlash tabiatini tushunish hali ham qiyin.

Ushbu tadqiqotda biz reaktiv molekulyar dinamika simulyatsiyalaridan foydalangan holda nuqsonli grafenlarda H_2 molekulalarining fizik adsorbsiya mexanizmlarini o‘rganib chiqdik. Biz grafendagi nuqsonlar hajmini va kontsentratsiyasini oshirish tizimdagi atomlarning qisman zaryadlarini o‘zgartirish orqali H_2 molekulalarining sirtdagi fizisorbsiyasini oshirishini aniqladik. Xususan, bizning hisob-kitob natijalarimiz shuni ko‘rsatdiki, nuqsonlarning eng katta foizi (10,27%) bo‘lsa, H_2 molekulalarining gravimetrik zichligi atrof-muhit sharoitida taxminan 2,12 wt.% ni tashkil qiladi, bu tajribalar va eksperimental olingan gravimetrik zichliklar oralig‘ida. Natijalar shuningdek, H_2 molekulalarining fizisorbsiyasi grafen yuzasidagi nuqsonlarning hajmi va konsentratsiyasi bilan bog‘liqligini ko‘rsatdi.

Ushbu tadqiqot atom darajasidagi turli nuqson grafenda vodorodni saqlash mexanizmlarini yaxshiroq tushunishga yordam beradi.

Аннотация

Исследования по хранению водорода с использованием наноматериалов на основе углерода в настоящее время привлекают все больший интерес. Тем не менее, понимание природы хранения графеновых поверхностей все еще остается неясным.

В этом исследовании мы исследовали механизмы физической адсорбции молекул H_2 на дефектных графенах с использованием реактивного молекулярно-динамического моделирования. Мы обнаружили, что увеличение размера и концентрации дефектов в графене увеличивает физисорбцию молекул H_2 на поверхности за счет изменения парциальных зарядов атомов в системе. В частности, наши результаты показали, что в случае наибольшего процента дефектов (10,27%) гравиметрическая плотность молекул H_2 составляет около 2,12 wt.% в условиях окружающей среды, что находится в диапазоне гравиметрических плотностей, полученных в результате экспериментов и других расчетов. Результаты также показали, что физическая адсорбция молекул H_2 связана как с размером, так и с концентрацией дефектов на поверхности графена.

Это исследование способствует лучшему пониманию механизмов хранения водорода в графене с различными дефектами на атомном уровне.

Abstract

Research on hydrogen storage using carbon-based nanomaterials is currently attracting increasing interest. Yet, understanding the storage nature of graphene surfaces is still elusive.

In this study, we investigated the physisorption mechanisms of H_2 molecules on defective graphenes using reactive molecular dynamics simulations. We found that an increase in the size and concentration of defects in graphene increases the physisorption of H_2 molecules on the surface due to a change in the partial charges of atoms in the system. Specifically, our results showed that in the case of the highest percentage of defects (10.27%), the gravimetric density of H_2 molecules is about 2.12 wt.% at ambient conditions, which is within the range of gravimetric densities obtained from experiments and other simulations. The results also indicated that the physisorption of H_2 molecules is related to both the size and the concentration of defects on the graphene surface.

FIZIKA-TEXNIKA

This study contributes to a better understanding of the mechanisms of hydrogen storage in graphene with various defects at the atomic level.

Kalit so'zlar: *vodorod saqlash, nuqsonli grafen, vodorod fizisorbsiyasi, reaktiv molekulyar dinamika.*
Ключевые слова: *хранение водорода, дефектный графен, физисорбция водорода, реактивная молекулярная динамика.*
Key words: *hydrogen storage, defective graphene, hydrogen physisorption, reactive molecular dynamics.*

KIRISH

Vodorod energiyasi ekologik toza va barqaror tabiati tufayli yonilg'i xujayralari, elektronika sanoati va farmatsevtika kabi turli sohalarda juda istiqbolli "yashil" yoqilg'i hisoblanadi [1,2]. Bu energiya ishlab chiqarish uchun ishlatilishi mumkin bo'lgan samarali muqobil yoqilg'i bo'lishi taxmin qilinmoqda. Hozirgi vaqtda fotokatalitik va elektrokatalitik parchalanish usullaridan foydalangan holda suvdan vodorodni ajratib olish (yoki olish) jarayoni bo'yicha tadqiqotlar olib borilmoqda [3,4]. Vodorod ishlab chiqarish usullari turli mamlakatlarda keng o'rganilgan. Xususan, Yaponiyada vodorodni ajratib olish uchun TiO_2 (anod) va SiC (katod) kabi samarali katalizatorlar qo'llanilayotgan bo'lsa [5], Ispaniyada vodoroddan yoqilg'i ishlab chiqarish uchun fotoelektrokatalizdan foydalanish loyihasi boshlangan [6]. Shuningdek, Avstraliya quyosh va shamol energiyasidan foydalangan holda vodorod ishlab chiqarishni yo'lga qo'ymoqda [7]. Vodorodni yuqori haroratlarda turli birikmalar va molekulalardan [8], shu jumladan, metandan nanomateriallar yordamida ham olish mumkin [9,10]. Bundan tashqari, so'nggi paytlarda nazariy va amaliy jihatdan o'rganilayotgan plazma reaktorida vodorod ishlab chiqarishning regenerativ usuliga e'tibor qaratilmoqda [11].

Turli manbalardan olingan vodorod energiya manbai sifatida turli texnologiyalar va sanoat tarmoqlarida keng qo'llanilmoqda. Xususan, Rossiyaning NOVATEK kompaniyasi, bug'-gaz qurilmasidagi yoqilg'ida vodoroddan foydalanish ulushini 60% gacha oshirib, undan elektr energiyasi ishlab chiqarish bo'yicha birinchi sanoat loyihasini ishga tushirgan bo'lsa [6], Estoniyaning Tallinna Sadam Gamburg portida yuk tashuvchi kema (parom) larda ekologik toza yoqilg'i bo'lgan vodoroddan foydalanilmoqda [12]. Shotlandiyada esa 300 ga yaqin uy xo'jaligida tabiiy qazib olingan gaz o'rniga ekologik vodoroddan foydalanishga o'tkazila boshlandi [13]. Shuningdek, Amerika qo'shma shtatalarining Apple kompaniyasi vodorod yonilg'i elementi bilan ishlaydigan mobil qurilmani laboratoriya sharoitida sinov uchun ishlab chiqarishni yo'lga qo'ygan bo'lsa [14], Germaniyada vodorod dvigateli bilan ishlaydigan avialaynerlar ishga tushirila boshlandi [15,16].

Vodorod energiyasining samaradorligini ta'minlash uchun izolyatsiya qilingan vodorodni materiallarda yetarli darajada saqlash juda muhimdir [17-20]. Vodorodni uchta asosiy usul, ya'ni siqilgan gaz [21], kriogen suyuqlik [22] va qattiq saqlash [23] yordamida saqlash mumkin. Qattiq holatda saqlash usuli boshqa ikki usulga qaraganda xavfsizroq va tejamkor hisoblanadi, chunki nanomateriallar vodorodni singdiradi, bu esa talab qilinadigan katta hajm va qo'shimcha energiyani kamaytiradi. Hozirgi vaqtda vodorod saqlash materiallari sifatida metall gidridlar [24], kompleks gidridlar [23] va uglerod asosidagi nanostrukturalar [25,26] yordamida tadqiqot olib borilmoqda. Bu materiallarda vodorodni saqlashning ham fizisorbtsiya [27], ham xemisorbtsiya [28] usullariga alohida e'tibor qaratilgan va ularning samaradorligini o'rganish bo'yicha izchil ishlar olib borilmoqda. So'nggi paytlarda yuqori vodorod saqlash indeksiga ega bo'lgan uglerod asosidagi nanomateriallarga qiziqish ortdi. Kimyoviy barqarorligi va katta saqlash qobiliyati tufayli bu nanomateriallar vodorodni samarali saqlash uchun yaxshi nomzodlar hisoblanadi [29]. Uglerod asosidagi materiallar orasida grafen o'zining yuqori mexanik, kimyoviy, elektr, optik va issiqlik xususiyatlari tufayli keyingi paytlarda vodorod saqlash uchun istiqbolli materiallardan biri sifatida qaralmoqda [30]. Vodorod atom va molekulalari grafenning har ikki tomonida adsorbsiyalana olish xususiyati ulardagi saqlash ko'rsatkichini yanada oshirishga xizmat qilishi mumkin [32]. Lekin, grafenning bir va ikki qavatli, nuqsonsiz va nuqsonli strukturalarida vodorodni fizisorbtsiya va xemisorbtsiya yo'li bilan saqlash bo'yicha turli xil eksperimental va nazariy tadqiqotlar olib borilayotganiga qaramay, xona haroratida bu strukturalarning vodorod saqlash ko'rsatkichi haligacha pastligicha qolmoqda [33,34]. So'nggi yillarda vodorodning grafenda saqlash ko'rsatkichini oshirish bo'yicha tadqiqot natijalari shuni ko'rsatayaptiki, nuqsonsiz grafenga

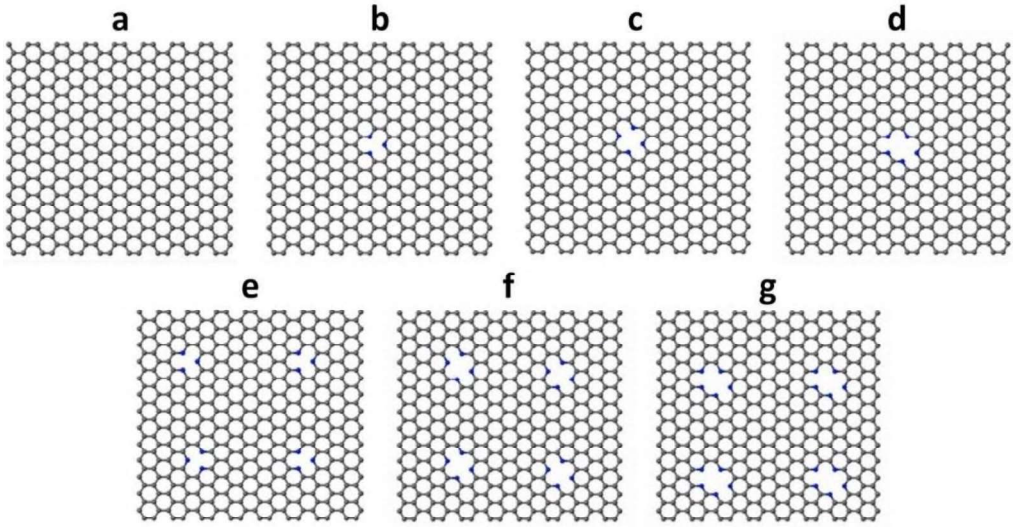
nisbatan turli xil (5-8-5, 555-777, 5555-6-7777) nuqsonli grafenlarda bu koʻrsatkich nisbatan yuqori boʻladi [35]. Shunday boʻlsada, eksperimental olinayotgan grafen sirtidagi nuqsonlarning turlari va oʻlchami har xil boʻlganligi sababli, uning sirtida vodorodni saqlash koʻrsatkichi pastligicha qolmoqda.

Ushbu tadqiqot ishida nuqsonsiz va turli (single, double va triple) nuqsonga ega boʻlgan grafenlardagi vodorod molekula (H_2) lari adsorbsiyasining asosiy mexanizmlari oʻrganildi.

HISOBLASH USULLARI

Turli xil (ya'ni, nuqsonsiz va nuqsonli) agrafen sirtlari bilan H_2 molekulasining oʻzaro ta'sir jarayonlarini modellashtirish MD usuliga asoslangan LAMMPS dasturiy paketi yordamida amalga oshirildi [37]. Jarayonlarni modellashtirishda atomlar orasidagi oʻzaro ta'sirlarni tavsiflash uchun ReaxFF potentsiali qoʻllanilib, atomlar orasidagi kimyoviy bogʻlarning shakllanishi va uzilishi hodisalarini ishonchli tasvirlash uchun Zou va boshqalar tomonidan tavsiya qilingan parametrlardan foydalanildi [38]. Modellashtirishlarda nuqsonsiz (G) (1-rasm, a) va mos ravishda bitta nuqsonli grafen (SVG), ikkita nuqsonli grafen (DVG) va uchta nuqsonli grafen (TVG) strukturalari olingan boʻlib (1-rasm, b,c,d,e,f,g), G grafenning sirt maydoni (S_G) va undagi uglerod atomlari olib tashlangandagi SVG, DVG va TVG nuqsonli grafenlarning sirt maydon (S_{dG}) lari nisbati orqali nuqsonlarning grafendagi ulushi ($k=S_{dG}/S_G$) hisoblanadi. Bunda bir (k_{SVG}), ikki (k_{DVG}) va uchta (k_{TVG}) nuqsonli grafenlar uchun k koeffitsient oʻzgaruvchi boʻlib, mos ravishda quyidagicha hisoblanadi. $k_{SVG}=S_{SVG}/S_G$, $k_{DVG}=S_{DVG}/S_G$ va $k_{TVG}=S_{TVG}/S_G$. Tanlangan G grafendagi (1-rasm, a) SVG, DVG va TVG nuqsonli (1-rasm, b,c,d,e,f,g) grafenlar sirtida nuqsonlar soni 1 va 4 ta qilib olingan boʻlib, grafendagi nuqsonlarning sirtdagi ulushi quyidagicha hisoblanadi: $k= k_{SVG}+ k_{DVG}+ k_{TVG}$.

Tanlangan nuqsonsiz (G) grafen (32.89 Å×30.96 Å) ning sirti yuzasida (SVG-1, DVG-1, TVG-1, SVG-4, DVG-4, TVG-4) nuqsonli grafenlarning sirt yuzalari mos ravishda 15.69, 20.92, 26.15, 62.72, 83.68, 104.60 $Å^2$ ni tashkil yetadi. Grafenlardagi nuqsonlarning sirt maydonlari SVG-1, DVG-1, TVG-1, SVG-4, DVG-4, TVG-4 kontsentratsiyali grafenlarga mos ravishda 19.01, 25.40, 31.82, 76.50, 103.06, 130.11 m^2/g larga teng. G grafen sirt yuzasidagi nuqsonlar foizi mos ravishda (15.69 Å2/32.89 Å×30.96 Å) 1.54, 2.05, 2.57, 6.15, 8.22, 10.57 % ga teng boʻlib, bu qiymatlar nazariy (2-10%) hamda eksperiment, ya'ni, bir (SV) va ikki (DV) nuqsonli hamda Stone-Wall) da olingan (6-14%) natijalarga mos keladi. Eksperimentlarda olinadigan juda uzun grafenga taqlid qilish maqsadida model grafenlar x va y oʻqidagi yoʻnalishi boʻyicha davriy chegara shartlari qoʻllanilgan. Shunday qilib, jami yettita model grafenlari, ya'ni G, SVG-1, DVG-1, TVG-1, SVG-4, DVG-4 va TVG-4 ishlatilgan.



1-rasm. Nuqsonsiz (toza) grafen G (a) va turli konsentratsiyali nuqsonli grafenlar, ya'ni SVG-1 (b), DVG-1 (c), TVG-1 (d), SVG-4 (e), DVG- 4 (f), TVG-4 (g). Raqamlar nuqsonli grafendagi bitta (b-d) yoki toʻrtta (e-g) nuqsonni bildiradi.

FIZIKA-TEXNIKA

Modellashtirishlarda grafenda vodorod molekulalari (H_2) ning fizisorbtsiya jarayonini o‘rganish uchun dastlab termodinamik tizim energiyasi birlashgan gradiyent (conjugate gradient) metodi yordamida minimizatsiya qilindi. Energiyasi minimal holga keltirilgan grafenlar NpT ansamblida Berendsen [40] termostati/barostati orqali 1 K/ps [39] harorat gradiyenti bilan 300 K gacha qizdirildi. Keyin, termodinamik tizim haroratining NVT ansamblda Bussi termostati [41] orqali 100 ps davomida 300 K da saqlanishi nazorat qilinadi. H_2 molekulalarining grafen sirti bilan o‘zaro ta'sirini modellashtirish uchun ularni 1 ps vaqt oralig‘i bilan termodinamik tizimga tasodifiy ravishda kiritib borilib, molekulalar orasidagi masofa kamida 12Å bo‘lishi ta'minlanadi. Jarayonlarni modellashtirishda atom/molekulalarning o‘rtacha bosimi *(p)* zarba oqimi *(J)* ga bog‘liq bo‘ladi. Xususan, ushbu modellashtirish ishida, zarba oqimi xona haroratida (300 K) 10.64 nm^{-2} ns^{-1} ga teng bo‘lib, H_2 molekulalarining minimal bosim 91.28 kPa (~0.90 atm) ni tashkil etadi.

Undan tashqari, grafenlarga fizisorbtsiyalangan vodorod molekulalarining kontsentratsiyasini nisbiy og‘irlik (wt.%) sifatida quyidagicha hisoblandi:

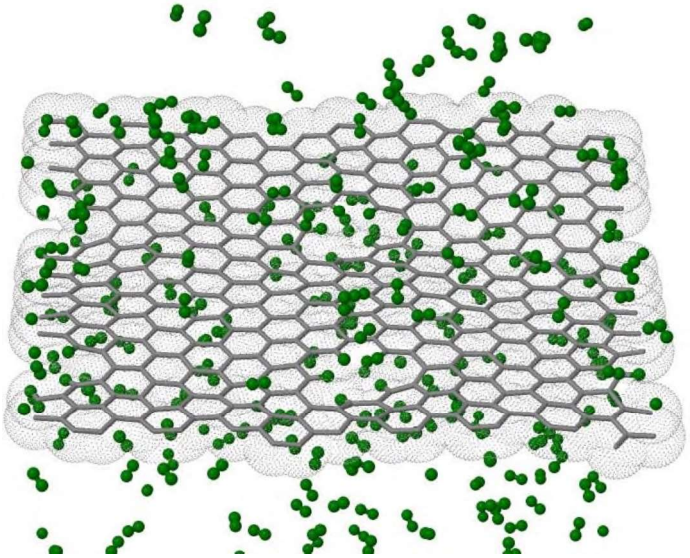
$$wt.\% = \frac{m_H \times N_H}{m_H \times N_H + m_C \times N_C} \times 100\,\%$$

bu yerda m_H – vodorod atomining massasi, m_C – grafendagi uglerod atomining massasi, N_H– adsorbtsiyalangan vodorod atomlarining soni, N_C esa grafendagi uglerod atomlarining soni.

Umumiy modellashtirish vaqti 3 ns ga teng bo‘lib, har bir natijaviy qiymat 5 ta mustaqil holatlar natijalarini o‘rtalashtirish orqali olinadi.

NATIJALAR VA MUHOKAMA

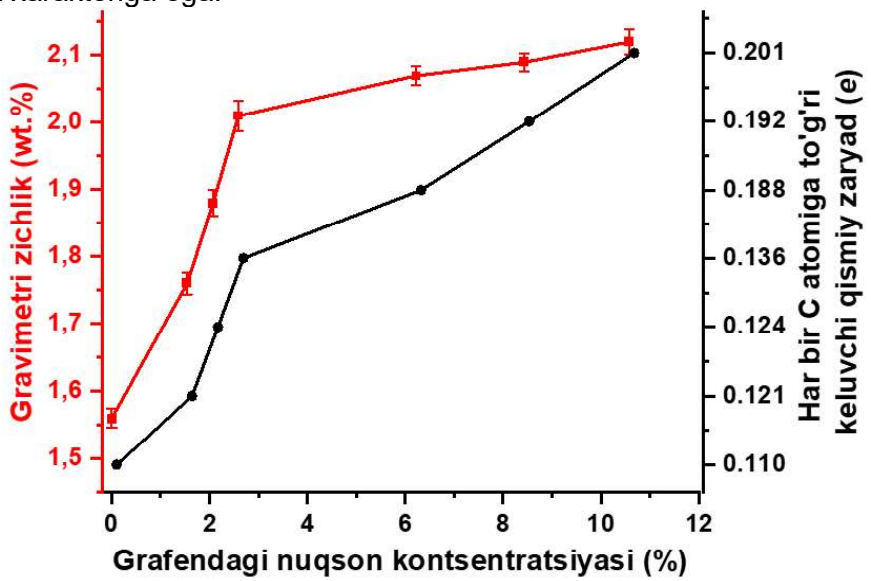
Grafenning vodorodlash jarayoniga misol sifatida, 2-rasmda nuqsonli grafen TVG-4 (ya'ni, bu ishda nuqsonlarning eng yuqori konsentratsiyasi bo‘lgan grafen) va uning atrofidagi H_2 molekulalari tasvirlangan. Uglerodga asoslangan nanomateriallar (grafen, nanonaycha va h.k.) da H_2 molekulalarining fizisorbsiyasi bog‘lanmagan (Kulon va Van-der Vaals) kuchlari tufayli nanostruktura sirtiga yaqin joylarda (ya’ni, 3 Å atrofida [42]) sodir bo‘ladi, deb qaraladi. Shuning uchun biz fizisorblangan H_2 molekulalarining miqdorini (yoki kontsentratsiyasini) aniqlash uchun grafen yuzasidan 3 Å kesish masofasidan foydalandik. Ko‘rinib turibdiki, TVG-4 grafenida yuzaning 3 Å masofasida ko‘proq H_2 molekulalari (ya'ni, tizimdagi umumiy H_2 molekulalarining 42%) fizisorbsiyalangan (2-rasmga qarang).



2-rasm. Atrofidagi H_2 molekulalari bilan grafenning ko‘ndalang kesimi. Van der Vaals sharlari bo‘lgan H va C atomlari mos ravishda yashil va kulrang ranglarda ko‘rsatilgan.

Fulleren, nanotrubka va grafen kabi uglerodli nanomateriallarning reaktivligi, birinchi navbatda, uglerod atomlarining piramidalanish burchaklarida (θ_p) aks ettirilgan sferik geometriyasi tufayli yuzaga keladigan yuqori kuchlanishga bog‘liq [43]. Uglerod nanonaycha (UNN) laridagi *p*-orbitallarning egriligi mahalliy kuchlanishni (yoki deformatsiyani) keltirib chiqaradi, bu esa C atomlarining piramidallanishi va siljishiga olib keladi. Binobarin, bu shtamm UNNlarning egriligi

ortishi tufayli reaktivlikni oshirishi mumkin. Boshqa tomondan, tekis grafen varaqlarida reaktivlik sezilarli darajada past, chunki C atomlari nol piramidallanish burchagi bilan planar shaklda sp^2 gibridlanishiga ega. (θ_p=0°). Shunday qilib, H_2 molekulalarining grafen yuzasi bilan o‘zaro ta’siri, ehtimol, fizisorbsiya xarakteriga ega.



3-rasm. Fizisorblangan H_2 molekulalarining o‘rtacha gravimetrik zichligi (chap, qizil egri) va grafendagi C atomlarining o‘rtacha qismiy zaryadi (o‘ng, ko‘k egri), nuqsonlar konsentratsiyasiga bog‘liq.

3-rasmda nuqsonlar kontsentratsiyasiga qarab fizisorbsiyalangan H_2 molekulalarining gravimetrik zichligi ko‘rsatilgan. Avvalgi qismlarda (Hisoblash usullari) aytilganidek, nuqsonlarning konsentratsiyasi 0 dan 10,27% gacha, ya'ni nuqsonsiz grafen (G) dan juda nuqsonli (TVG-4) ga qadar belgilandi. Rasmdan ko‘rinadiki, 0.0% grafen atrofiga fizisorbtsiyalangan H_2 molekulalari nisbiy og‘irligi 1.56 wt.% ni tashkil etadi. Grafenlarlarning nuqson kontsentratsiyasi 1.54, 2.05, 2.57, 6.15, 8.22 va 10.27% grafenlarda vodorod saqlash ko‘rsatkichi mos ravishda 1.76, 1.88, 2.01, 2.06, 2.08 va 2.12 wt.% gacha oshgan. Boshqacha qilib aytganda, 300 K haroratda, grafen sirtining vodorod bilan qoplanish darajasi (N_H/N_C, %) nuqsonsiz grafen (G) va nuqson kontsentratsiyasi 1.54, 2.05, 2.57, 6.15, 8.22, 10.27% (mos ravishda SVG-1, DVG-1, TVG-1, SVG-4, DVG-4, TVG-4) bo‘lgan grafenlarda mos ravishda 18.75 va 21.25, 22.71, 24.21, 24.61. 24.84, 25.74% ga teng bo‘lishi aniqlandi. Bu olingan qiymatlarni grafitdan eksperiment yo‘li bilan ajratib olingan turli xil grafen na’munalari (sirt maydoni 639-1550 m^2/g) va MD hisoblashlari (sirt maydoni 1200 m^2/g) yordamida olingan sirt maydonlarining H_2 saqlash ko‘rsatkichlari bilan solishtirilganda mos ravishda 1.92 wt.% va 2.20 wt.% ga teng bo‘lgan [36]. Natijalar shunga dalolat qiladiki, grafendagi nuqsonlar konsentratsiyasini oshirish orqali uning sirtida fizisorbsiyalangan H_2 molekulalarining nisbiy og‘irligini oshirish mumkin. Grafen sirtidagi nuqsonlar kontsentratsiyasining ortishi bilan grafen sirtiga fizisorbtsiyalanuvchi H_2 molekulalari nisbiy og‘irligining ortishini ulardagi uglerod (C) va vodorod (H) atomlari xususiy zaryadlarining o‘zgarishi orqali tushuntirish mumkin (3-rasm, ko‘k rangda). Natijalardan ko‘rish mumkinki, grafendagi nuqsonlar kontsentratsiyasi oshishi bilan ulardagi C atomlarining o‘rtacha xususiy zaryadi oshgan.

Grafenda uglerod (χ=2,55) atomi vodorod (χ=2,20) atomiga nisbatan yuqori elektronegativlik qiymatiga ega. Elektromanfiylikdagi bu farq grafen yuzasi va H_2 molekulalari o‘rtasidagi Van der Vaals va Kulon kuchlari kabi bog‘lanmagan o‘zaro ta'sirlarga olib keladi. Natijada, grafendagi C atomlarining o‘rtacha qisman zaryadi -0,121, -0,124, -0,136, -0,188, -0,192 va -0,201e bo‘lib, bu grafendagi nuqson konsentratsiyasining 1,54, 2,05, 2,57, 6,15, 8,22 va 8,22 % qiymatlariga to‘g‘ri keladi. Bu nuqsonlar konsentratsiyasining ortishi nuqsonli grafenlarda C atomlarining qismiy zaryadlarining oshishiga olib kelishini ko‘rsatadi. Bu o‘z navbatida, grafen yuzasida H_2 molekulalari va C atomlari o‘rtasida nisbatan kuchliroq o‘zaro ta’sirga va shu bilan nuqsonli grafenda H_2 molekulalarining yuqori adsorbsiyasiga olib keladi.

3-rasm (qizil egri chiziq), shuningdek, pastroq konsentratsiyada nuqsonlar hajmining oshishi bilan vodorodning adsorbsiya tezligi keskin oshib borishini ko‘rsatadi. Xususan, SVG-1, DVG-1 va TVG-1 uchun nuqsonlar ulushi bo‘yicha o‘rtacha qiymat 0,175 wt.% ni tashkil qiladi. Biroq, bu ko‘rsatkich SVG-4, DVG-4 va TVG-4 holatlari uchun bu qiymat taxminan 12 marta kamaygan. Shunga qaramay, H_2 molekulalari va nuqsonli grafen o‘rtasida hatto past konsentratsiyalarda ham nuqsonlar hajmining oshishi katta nuqsonlarning paydo bo‘lishi va natijada bog‘lanmagan o‘zaro ta'sirlarning zaiflashishi tufayli adsorbsiya tezligining pasayishiga olib kelishi mumkinligini taxmin qilish mumkin. Haqiqatan ham, kattaroq nuqsonlar o‘rniga kichikroq nuqsonlardan foydalanish, nuqsonlarning bir xil kontsentratsiyasida H_2 molekulalarini grafen yuzasida yuqori darajada ushlab turishga olib kelishi mumkin [44]. Kichikroq o‘lchamdagi nuqsonlarning to‘planishi nuqsonlar kontsentratsiyasi bo‘yicha cheklov mavjud bo‘lib, unga ko‘ra nuqsonlarning haddan tashqari ko‘pligi vodorodning adsorbsiya tezligi bo‘yicha qarama-qarshi natijalarga olib kelishi mumkin [45] va buning natijasida kattaroq nuqsonlar (bo‘shliqlar) paydo bo‘lishi mumkin. [46,47]. H_2 molekulalarining yuqori saqlash ko‘rsatkichiga erishishning yo‘llaridan biri, katta diametrli nuqsonli sirtlar o‘rniga kichikroq diametrli nuqsonli sirtlardan foydalanish.

XULOSA

Ushbu modellashtirish ishida biz nuqsonsiz va turli xil o‘lchamdagi nuqsonlarga ega bo‘lgan bir qavatli grafen sirtida xona harorati (T=300 K) da vodorod molekulalari fizisorbsiya jarayonini molekulyar dinamika metodi yordamida kompyuterda modellashtirish orqali o‘rgandik. Modellashtirish natijalari shuni ko‘rsatdiki, grafendagi nuqsonlar hajmining ortishi, H–C orasidagi xususiy zaryadlarning oshishi tufayli H_2 vodorod molekulalari sonining sirtda ortishiga olib keladi. Lekin, grafendagi nuqsonlar hajmining keskin ortib ketishi, H_2 molekulalarining sirtda qolish yehtimolligini (nisbiy og‘irlik) kamaytirib yuboradi. Nazariy jihatdan grafendagi vodorodning maksimal nisbiy og‘irligi 7.7 wt% ni tashkil qilib, bu qiymat temperatura va bosimga kuchli bog‘langan. Bu modellashtirish ishida H_2 vodorod molekulalari saqlash ko‘rsatgichi ~0.90 kPa bosim va 300 K haroratda 2.12 wt% ga teng bo‘ldi. Bunda adsorbsiyalangan H_2 molekulalari nisbiy og‘irligi grafen sirtidagi nuqsonlar soni va o‘lchamiga bevosita bog‘liq bo‘ladi.

Umuman olganda, ushbu tadqiqot nuqsonli grafenlarda vodorod fizisorbsiyasining asosiy mexanizmlarini tushunishga yordam beradi, bu esa o‘z navbatida vodorod saqlash hajmini oshirish uchun nuqsonlarni qanday boshqarishni tushunishimizni yaxshilaydi.

ADABIYOTLAR RO‘YXATI

1. Y.-P. Chen, Nanostructured Materials for Next-Generation Energy Storage and Conversion: Hydrogen Production, Storage, and Utilization (Springer Berlin Heidelberg, New York, NY, (2017).
2. P. P. Edwards, V. L. Kuznetsov, and W. I. F. David, Hydrogen Energy, Phil. Trans. R. Soc. A. 365, 1043 (2007).
3. Adriana Rioja-Cabanillas, David Valdesueiro, Pilar Fernández-Ibáñez and John Anthony Byrne, Hydrogen from wastewater by photocatalytic and photoelectrochemical treatment, Journal of Physics: Energy, Vol 3, № 1, (2021)
4. Akihiko Kudo and Yugo Miseki “Heterogeneous photocatalyst materials for water splitting” Chem. Soc. Rev., 2009, 38, 253–278
5. Япония рассчитывает “озеленить” энергетику за счёт добычи гидрата метана // https://3dnews.ru/1035343/yaponiya-rasschitivaet-ozelenit-energetiku-za-schyot-dobichi-gidrata metana
6. НОВАТЭК модернизирует турбины на ТЭС «Ямал СПГ»// https://www.kommersant.ru/doc/4606242 8. Зелёный водород из солнечной энергии без электролиза — совместный проект Repsol и Enagas // https://renen.ru/zelyonyj-vodorod-iz-solnechnoj-energii-bez-elektroliza-sovmestnyj-proekt-repsol-i enagas/
7. Австралия может стать мировым производителем “зеленого” водорода // https://teknoblog.ru/2021/07/23/112784
8. Pavlos Nikolaidis, Andreas Poullikkas, “A comparative overview of hydrogen production processes”, Renewable and Sustainable Energy Reviews, Volume 67, January (2017), pp 597-611
9. Nuria Sánchez-Bastardo, Robert Schlögl, and Holger Ruland “Methane Pyrolysis for Zero-Emission Hydrogen Production: A Potential Bridge Technology from Fossil Fuels to a Renewable and Sustainable Hydrogen Economy” Ind. Eng. Chem. Res. 2021, 60, 32, 11855–11881
10. Justyna Majewska, Beata Michalkiewicz, Production of hydrogen and carbon nanomaterials from methane using Co/ZSM-5 catalyst, International Journal of Hydrogen Energy, Vol 41, Iss 20, 1 June 2016, pp. 8668-8678
11. Benjamin W Longmier, Alec D Gallimore and Noah Hershkowitz, Hydrogen production from methane using an RF plasma source in total nonambipolar flow, Plasma Sources Science and Technology, Vol 21, № 1, 2012
12. В Таллинском порту появится водородный терминал // https://neftegaz.ru/news/Alternative energy/694170-v-tallinskom-portu-poyavitsya-vodorodnyy-terminal.
13. Водородное отопление // https://terman-s.ru/otoplen-3/otoplenie-doma-vodorodom-vodorod-dlya otopleniya-zdanij-neobosnovannoe-reshenie.html
14. Apple запатентовала мобильное устройство с питанием от водородного топливного элемента // https://php.ru/news/687814

15. Tethered Chem Combos Could Revolutionize Artificial Photosynthesis // https://www.bnl.gov/newsroom/news.php?a=116868

16. Исследователи повышают эффективность производства водорода из солнечного света//https://www.hydrogenfuelnews.com/researchers-improve-efficiency-of producing-hydrogen-from sunlight/8538857/

17. Rahul Krishna, Elby Titus, Maryam Salimian, Olena Okhay, Sivakumar Rajendran, Ananth Rajkumar, J. M. G. Sousa, A. L. C. Ferreira, João Campos Gil and Jose Gracio, "Hydrogen Storage for Energy Application", Hydrogen Storage Chapter 10, pp. 243-266. (2020)

18. K. Xia, Q. Gao, J. Jiang, and H. Wang, An Unusual Method to Prepare a Highly Microporous Carbon for Hydrogen Storage Application, Materials Letters 100, 227 (2013).

19. I. Jain, P. Jain, A. Jain, "Novel hydrogen storage materials: a review of lightweight complex hydrides" J. Alloys Compd. 503, 303–339 (2010).

20. Ramin Moradi, Katrina M. Groth, Hydrogen storage and delivery: Review of the state of the art technologies and risk and reliability analysis, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 44, Iss. 23,3 May 2019, pp.12254-12269

21. P. A. Owusu et al., A Review of Renewable Energy Sources, Sustainability Issues and Climate Change Mitigation, Null **3**, 1167990 (2016).

22. G. M. Joselin Herbert et al., A Review of Wind Energy Technologies, Renewable and Sustainable Energy Reviews **11**, 1117 (2007).

23. Y. Song et al., Electronic Structure, Stability and Bonding of the Li-N-H Hydrogen Storage System, Phys. Rev. B **74**, 195120 (2006).

24. P. Chen, Z. Xiong, J. Luo, J. Lin, K.L. Tan, "Interaction of hydrogen with metal nitrides and imides" Nature 420, 302–304 (2002).

25. M. Rzepka, P. Lamp, M. De la Casa-Lillo, "Physisorption of hydrogen on microporous carbon and carbon nanonaychas". J. Phys. Chem. B 102, 10894–10898 (1998).

26. H. Kajiura, S. Tsutsui, K. Kadono, M. Kakuta, M. Ata, Y. Murakami, "Hydrogen storage capacity of commercially available carbon materials at room temperature" Appl. Phys. Lett. 82, 1105–1107 (2003).

27. M. Nijkamp, J. Raaymakers, A. Van Dillen, K. De Jong, "Hydrogen storage using physisorption–materials demands" Appl. Phys. A 72, 619–623 (2001).

28. Man Mohan, Vinod Kumar Sharma, E. Anil Kumar, V. Gayathri, "Hydrogen storage in carbon materials - A review" Energy Storage.;p.p. 1-35 (2019)

29. Krzysztof Jastrzębski and Piotr Kula, Emerging Technology for a Green, Sustainable Energy-Promising Materials for Hydrogen Storage, from Nanonaychas to Graphene—A Review, Materials 2021, 14(10), 2499.

30. K. S. Novoselov,V.I.Fal'ko, L. Colombo, P. R. Gellert, M. G. Schwab K. Kim, "A roadmap for graphene", Nature,2012,490,192-200.

31. Gao Yang, Lihua Li, Wing Bun Lee & Man Cheung Ng, "Structure of graphene and its disorders: a review", Science and Technology of Advanced Materials (2018)

32. Andrea C. Ferrari. "Science and technology roadmap for graphene,related two-dimensional crystals, and hybrid systems", Nanoscale 7, 4598-4810, (2015)

33. Ziwei Xu,Tianying Yan,Guiwu Liu,Guanjun Qiao and Feng Ding, "Large scale atomistic simulation of single-layer graphene growth on Ni(111) surface: molecular dynamics simulation based on a new generation of carbon–metal potential", Nanoscale, 8, 921-928, (2016)

34. Fatemeh Bakhshi, Nafiseh Farhadian, "Improvement of hydrogen storage capacity on the palladium-decorated N-doped graphene sheets as a novel adsorbent: A hybrid MD-GCMC simulation study", International journal of hydrogen energy (2019)

35. Igor A. Baburin, Alexey Klechikov, Guillaume Mercier,Alexandr Talyzin, Gotthard Seifert. "Hydrogen adsorption by perforated graphene" International journal of hydrogen energy 40, pp.6594 – 6599 (2015)

36. Deepak Kag, Nitin Luhadiya, Nagesh D. Patil, S.I. Kundalwal, "Strain and defect engineering of graphene for hydrogen storage via atomistic modelling" International journal of hydrogen energy 46, 22599 – 22610, (2021)

37. B. J. Alder and T. E. Wainwright, Phase Transition for a Hard Sphere System, J. Chem. Phys. 27, 1208 (1957).

38. K. Chenoweth, A. C. T. van Duin, and W. A. Goddard, "ReaxFF Reactive Force Field for Molecular Dynamics Simulations of Hydrocarbon Oxidation", J. Phys. Chem. A 112, 1040 (2008).

39. J. Sun et al., Molecular Dynamics Simulations of Melting Iron Nanoparticles with/without Defects Using a Reaxff Reactive Force Field, Sci Rep **10**, 1 (2020).

40. H. Berendsen, J. P. M. Postma, W. van Gunsteren, A. DiNola, and J. R. Haak, "Molecular-Dynamics with Coupling to An External Bath", The Journal of Chemical Physics 81, 3684 (1984).

41. G. Bussi, D. Donadio, and M. Parrinello, "Canonical Sampling Through Velocity Rescaling", The Journal of Chemical Physics 126, 014101 (2007).

42. J. S. Arellano, L. M. Molina, A. Rubio, M. J. Lo´pez and J. A. Alonso, "Interaction of molecular and atomic hydrogen with (5,5) and (6,6)single-wall carbon nanonaychas", Journal of chemical physics 11**7**, 5 (2002)

43. Randviir E P, Brownson D A C, Banks C E A "Decade of graphene research: production, applications and outlook". Mater Today 17, (2014) 426–432.

44. Klechikov A, Mercier G, Yu J, Talyzin AV. Hydrogen storage in bulk graphene-related materials. Micropor Mesopor Mater 2015.

45. Patchkovskii S, Tse JS, Yurchenko SN, Zhechkov L, Heine T, Seifert G. Graphene nanostructures as tunable storage media for molecular hydrogen. Proc Natl Acad Sci U S A 2005;102:10439e44.

46. Mc Allister M.J, Li J.L, Adamson D.H, Schniepp H.C, Abdala A.A, Liu J, et al. Single sheet functionalized graphene by oxidation and thermal expansion of graphite. Chem Mater 2007.

47. D. Henwood and J. David Carey, "Ab initio investigation of molecular hydrogen physisorption on graphene and carbon nanonaychas", Physical Review B 75, (2007), 245413.