TỔNG HỢP BỘT NiO DẠNG CẦU RỖNG CẤU TRÚC NANO BẰNG PHƯƠNG PHÁP NHIỆT PHÂN AEROSOL

Nguyễn Văn Minh[1*], Yudin Andrey[2], Nguyễn Tiến Hiệp[2], Nguyễn Huynh[1], Lê Hải Ninh[1], Nguyễn Xuân Phương[1]

Tóm tắt: *Trong nghiên cứu này, bột oxit niken (NiO) dạng cầu rỗng cấu trúc nano đã được tổng hợp bằng phương pháp nhiệt phân aerosol (NPA) dung dịch muối niken axetat $Ni(CH_3COO)_2$ nồng độ 10 % (theo khối lượng). Ảnh hưởng của nhiệt độ tổng hợp đến đặc trưng về kích thước và hình thái của các hạt NiO cấu trúc nano được làm rõ. Bột NiO được nghiên cứu bằng phương pháp hấp phụ nitơ nhiệt độ thấp (BET), nhiễu xạ tia X, hiển vi điện tử quét (SEM) và phân tích cấp độ hạt qua tán xạ ánh sáng động. Kết quả nghiên cứu cho thấy, sản phẩm thu được là bột đơn pha NiO cấu trúc lập phương diện tâm (fcc) có dạng cầu rỗng kích thước từ 500 nm đến 15 µm với lớp vỏ có độ dày cỡ 100 nm, được tạo thành từ những hạt nano kích thước trong khoảng 5 – 25 nm. Việc điều chỉnh nhiệt độ quá trình nhiệt phân từ 650 đến 1150 ºC cho phép kiểm soát kích thước trung bình của các hạt nano NiO từ 5 đến 15 nm, giảm kích thước các hạt cầu rỗng, hoàn thiện cấu trúc tinh thể, đồng thời tác động làm cho chúng có xu hướng chuyển hóa từ dạng cầu sang dạng mũ nấm hoặc biến dạng dị thường là hệ quả của việc tăng cường quá trình chuyển khối và chuyển nhiệt ở điều kiện nhiệt độ cao.*

Từ khóa: Cấu trúc nano; Nhiệt phân aerosol; Bột oxit niken (NiO); X-ray; BET; SEM.

1. MỞ ĐẦU

Bột oxit kim loại nói chung và oxit niken (NiO) nói riêng, đặc biệt là lớp vật liệu có cấu trúc nano ngày càng có nhiều ứng dụng quan trọng trong các lĩnh vực của khoa học và đời sống, kể cả trong công nghiệp quốc phòng như làm các chất phụ gia biến tính, tăng bền cho vật liệu sơn phủ, hợp kim; làm chất xúc tác cực nhạy, chất hấp phụ hoạt tính cao; làm vật liệu điện cực trong pin Lithium-ion, vật liệu quang điện tử hiệu suất cao; chế tạo các loại hóa-dược phẩm sử dụng trong y tế v.v. [1-4]. Tuy nhiên, giá thành của các loại vật liệu nano, trong đó, có bột nano NiO nhìn chung còn cao. Do đó, việc nghiên cứu, hoàn thiện các phương pháp mới tổng hợp vật liệu nano mang lại hiệu quả về mặt công nghệ và kinh tế là rất cần thiết [5].

Có nhiều phương pháp cơ, hóa, lý khác nhau để tổng hợp vật liệu nano oxit kim loại và các composite của chúng, trong đó, phương pháp nhiệt phân aerosol (NPA) các dung dịch muối kim loại là một phương pháp mới với nhiều ưu điểm như công nghệ và thiết bị tương đối đơn giản, tiết kiệm, có thể tận dụng nguyên liệu từ phế thải công nghiệp và đặc biệt là có thể điều chỉnh được các đặc trưng tính chất về kích thước, hình thái của sản phẩm thu được. Vật liệu nano tổng hợp bằng phương pháp NPA có độ sạch, độ bền ổn định cấu trúc tương đối cao, thường có dạng cầu rỗng với lớp vỏ được liên kết từ những hạt nano độc lập có hoạt tính hóa học cao do diện tích riêng bề mặt lớn. Vì vậy, chúng có thể được ứng dụng rộng rãi để làm các chất xúc tác, hấp phụ hoạt tính và đặc biệt rất triển vọng để dùng làm điện cực hiệu suất cao trong các loại pin Li-ion thế hệ mới v.v. [6-9].

Ngoài ra, sử dụng phương pháp NPA còn có thể tổng hợp được các loại vật liệu cấu trúc nano với thành phần hóa học phức tạp, đặc biệt khác như hạt nano carbon với độ xốp và diện tích riêng bề mặt cực cao [10, 11].

Hiện nay bột nano oxit niken NiO chủ yếu được tổng hợp bằng các phương pháp như kết tủa hóa học, plasma, nghiền cơ học, nổ điện v.v. Các phương pháp này nhìn chung hoặc năng suất thấp do nhiều giai đoạn hoặc rất tốn kém về năng lượng, sản phẩm thu

được khó kiểm soát về độ sạch, thành phần pha, các đặc trưng hình thái và kích thước [1-4, 12, 13]. Việc nghiên cứu tổng hợp bột nano NiO bằng phương pháp NPA là rất triển vọng, có thể cho phép rút ngắn các giai đoạn, nâng cao năng suất, điều chỉnh các tham số công nghệ để thu được sản phẩm với các tính chất như mong muốn.

Tiếp nối các nghiên cứu từ một số công trình đã công bố gần đây của nhóm tác giả [14-16], bài báo này trình bày một số kết quả nghiên cứu của quá trình tổng hợp bột NiO cấu trúc nano bằng phương pháp NPA muối $Ni(CH_3COO)_2$. Trong đó, nhóm tác giả đã phân tích làm rõ các đặc trưng về thành phần pha, hình thái và kích thước của các hạt NiO cấu trúc nano thu được, đồng thời nghiên cứu tác động ảnh hưởng của nhiệt độ lên các đặc trưng trên của sản phẩm.

Nghiên cứu tổng hợp và ứng dụng vật liệu nano trong lĩnh vực quốc phòng ở Việt Nam còn chưa nhiều, trong khi tiềm năng rất lớn. Nghiên cứu này sẽ đặt một trong những nền móng ban đầu để mở ra hướng nghiên cứu mới, triển vọng và mang tính thời sự đáp ứng nhu cầu trong sản xuất quốc phòng.

2. ĐỐI TƯỢNG VÀ PHƯƠNG PHÁP THỰC NGHIỆM

2.1. Đối tượng nghiên cứu và vật liệu ban đầu

Trong nghiên cứu này, đối tượng nghiên cứu là các mẫu bột NiO dạng cầu rỗng cấu trúc nano thu được bằng quá trình NPA ở các nhiệt độ khác nhau đối với dung dịch muối $Ni(CH_3COO)_2$ trong nước, nồng độ 10 % (theo khối lượng).

Trong các nghiên cứu lý thuyết [17, 18] người ta đã xác định được công thức tính kích thước của hạt aerosol trong sự phụ thuộc vào một số đại lượng đặc trưng (là các tham số công nghệ của quá trình tổng hợp bột nano oxit kim loại bằng phương pháp NPA) như sau:

$$d = \left(\frac{\pi\sigma}{\rho_{dd} \cdot f^2} \right)^{1/3} \quad (1)$$

Trong đó, d – Đường kính hạt aerosol, m;

σ – Năng lượng bề mặt của dung dịch, J/m^2;

ρ_{dd} – Tỷ trọng của dung dịch, kg/m^3;

f – Tần số dao động của sóng siêu âm, Hz.

Chúng ta thấy rằng, kích thước hạt aerosol thu được phụ thuộc vào tỷ trọng của dung dịch, tức là phụ thuộc vào nồng độ dung dịch. Cụ thể theo biểu thức (1), khi tăng nồng độ dung dịch (tỷ trọng của dung dịch tăng) thì kích thước hạt aerosol thu được giảm và ngược lại.

Như vậy, nếu nồng độ dung dịch quá nhỏ sẽ làm cho kích thước hạt aerosol thu được lớn, làm giảm chất lượng sản phẩm (cần có độ mịn phân tán cao, diện tích riêng bề mặt lớn). Tuy nhiên, thực tế cũng chứng minh rằng, khi nồng độ dung dịch quá cao sẽ làm cho quá trình phun tạo aerosol diễn ra khó khăn và hiệu suất của quá trình tổng hợp bột NiO sẽ giảm, ngoài ra còn làm cho cấu trúc hạt oxit thu được có xu hướng chuyển sang dạng đặc nguyên khối, bị vỡ, méo v.v. [19].

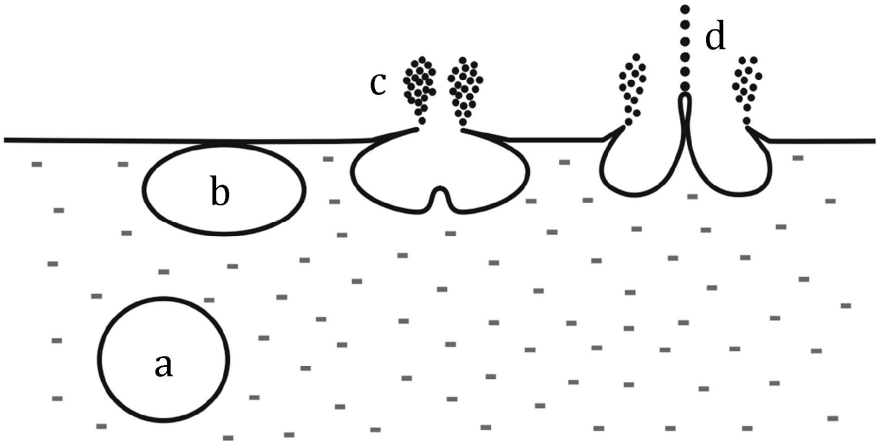
Dựa vào cơ sở tham khảo các nghiên cứu đi trước [20, 21], trong khuôn khổ bài báo này tham số nồng độ dung dịch được chọn và giữ cố định ở 10 % (theo khối lượng), trong khi tham số nhiệt độ quá trình nhiệt phân được thay đổi.

Vật liệu ban đầu để chuẩn bị dung dịch muối $Ni(CH_3COO)_2$ 10 % là nước cất và các tinh thể muối $Ni(CH_3COO)_2 \cdot 4H_2O$ mác ChDA (Ч.Д.А) theo tiêu chuẩn kỹ thuật ТУ ГХК 1544-61, nhập từ nhà cung cấp АО РЕАХИМ, LB Nga.

2.2. Các phương pháp, thiết bị thực nghiệm và nghiên cứu

Nguyên lý tổng hợp vật liệu cấu trúc nano bằng công nghệ NPA dựa trên quá trình

chuyển hóa dung dịch muối tiền chất từ dạng lỏng sang dạng aerosol (sol khí) bằng các tác nhân cơ học, khí lực học hoặc sóng siêu âm, sau đó dưới tác động nhiệt (trong lò nung hoặc buồng lửa) loại bỏ dung môi từ các hạt aerosol và xảy ra phản ứng hóa học phân hủy hợp chất muối ban đầu của kim loại thành vật liệu có cấu trúc nano. Khi sử dụng công nghệ sóng siêu âm thì các hạt aerosol được tạo nên do quá trình hình thành các bong bóng khí từ trong lòng khối dung dịch dưới tác động của sóng âm thanh tần số rất cao (cỡ hàng triệu Hz), sau đó các bong bóng khí này nổi lên bề mặt dung dịch, tiếp tục bị vỡ ra thành các hạt aerosol kích thước rất nhỏ ở dạng bọt khí với màng mỏng hoặc giọt dung dịch đặc (hình 1). Các hạt aerosol dạng bọt khí sau đó sẽ dễ dàng bay lên trong không khí, trong khi các giọt đặc chủ yếu rơi trở lại bề mặt dung dịch.



Hình 1. *Sơ đồ minh họa quá trình hình thành các hạt aerosol dưới tác động của sóng siêu âm: a) bong bóng khí bên trong khối dung dịch, b) bong bóng khí ở gần bề mặt dung dịch, c) bong bóng khí bị vỡ tạo nên các hạt aerosol dạng bọt khí với màng mỏng, d) các hạt aerosol dạng giọt đặc.*

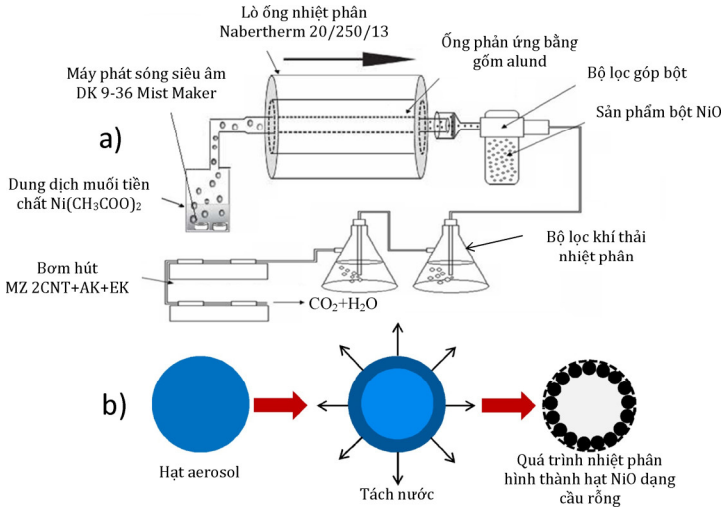
So với các phương pháp khác, việc sử dụng công nghệ sóng siêu âm cho phép tạo ra các hạt aerosol kích thước rất nhỏ (từ phần chục đến vài chục μm) với phân bố hạt theo kích thước tương đối hẹp [20].

Trong nghiên cứu này, quá trình tổng hợp vật liệu NiO cấu trúc nano được tiến hành nhờ hệ thống thiết bị như dưới hình 2a. Hệ thống bao gồm máy phát siêu âm DK 9-36 Mist Maker với tần số 1,2 MHz; lò nhiệt phân dạng ống Nabertherm 20/250/13 với buồng phản ứng làm từ gốm alund (đường kính trong 25 mm, dài 500 mm); bộ lọc góp bột để nhận và chứa sản phẩm bột NiO sau nhiệt phân; bộ lọc khí thải (để lọc bỏ các hạt bụi mịn thoát ra theo dòng khí thải trong quá trình nhiệt phân, trước khi thải ra môi trường); bơm hút MZ 2CNT+AK+EK với công suất hút 16 L/phút có tác dụng tạo luồng aerosol di chuyển có hướng trong ống lò phản ứng.

Quá trình tổng hợp các mẫu bột NiO được tiến hành trong khoảng nhiệt độ từ 650 đến 1150 ^{0}C với bước tăng 100 ^{0}C lần lượt các mẫu. Dải nhiệt này được chọn dựa trên cơ sở tham khảo các công trình nghiên cứu liên quan đã công bố, với mục đích nghiên cứu sự ảnh hưởng của nhiệt độ quá trình nhiệt phân lên một số đặc trưng tính chất của bột NiO thu được [20, 22]. Sự hình thành sản phẩm bột NiO xảy ra do quá trình tách nước và nhiệt phân (hình 2b) các hạt aerosol muối $Ni(CH_3COO)_2$ khi chúng kết hợp với oxy ở nhiệt độ cao theo phản ứng:

$$Ni(CH_3COO)_2 + 4O_2 \longrightarrow NiO+4CO_2+3H_2O \quad (2)$$

Các thí nghiệm đều được thực hiện ở điều kiện đẳng nhiệt và thông lượng khí chảy trong ống lò nhiệt phân không đổi (16 L/phút).



Hình 2. *a) Sơ đồ hệ thống thiết bị thực nghiệm tổng hợp bột NiO bằng phương pháp NPA, b) Sơ đồ minh họa quá trình hình thành hạt NiO dạng cầu rỗng trong quá trình nhiệt phân.*

Thành phần, cấu trúc pha của sản phẩm bột sau nhiệt phân được nghiên cứu bằng phương pháp nhiễu xạ tia X trên thiết bị nhiễu xạ Rikagu (phát xạ α-Fe). Dựa vào giản đồ tia X các mẫu bột, kích thước vùng tán xạ đồng nhất (D_{tx}) của tinh thể được tính theo công thức Scherrer [23]. Hình thái và một số đặc trưng kích thước các hạt NiO được nghiên cứu trên kính hiển vi điện tử quét JEOL JSM 6510 và Hitachi TM 1000. Diện tích riêng bề mặt (S_{bm}) và kích thước trung bình (D_{tb}) của các hạt nano NiO được xác định bằng phương pháp BET trên thiết bị Nova 1200e. Giá trị D_{tb} được xác định theo công thức:

$$D_{tb} = \frac{6}{\rho \cdot S_{bm}} \tag{3}$$

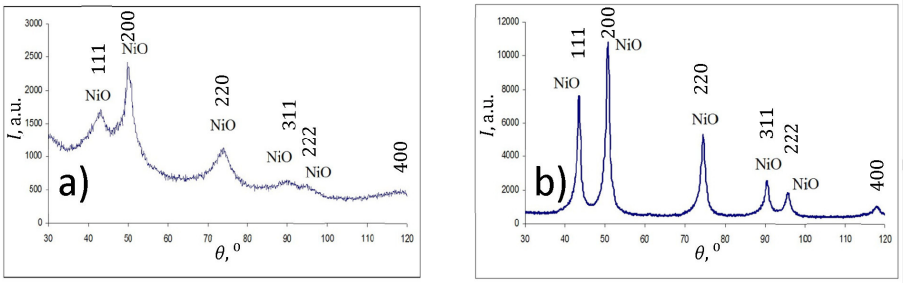
Trong đó, ρ là mật độ khối lượng của NiO.

Phân bố các hạt NiO theo kích thước được nghiên cứu bằng phương pháp tán xạ ánh sáng động trên thiết bị nhiễu xạ Laser Fritsch Analysette 22.

3. KẾT QUẢ THỰC NGHIỆM VÀ THẢO LUẬN

3.1. Thành phần, cấu trúc pha sản phẩm bột NiO và ảnh hưởng của nhiệt độ

Hình 3 trình bày kết quả nghiên cứu nhiễu xạ tia X các mẫu sản phẩm bột tổng hợp bằng phương pháp NPA từ dung dịch $Ni(CH_3COO)_2$ nồng độ 10 %. Các pic hiển thị trên giản đồ tia X của các mẫu bột đều tương ứng với các mặt phẳng có bộ chỉ số (hkl) lần lượt là (111), (200), (220), (311), (222) và (400). Điều này cho thấy rằng, sản phẩm bột thu được có thành phần đơn pha, gồm các tinh thể NiO với cấu trúc lập phương diện tâm (fcc) tạo nên [4].



Hình 3. *Giản đồ tia X của sản phẩm bột thu được sau quá trình NPA muối niken axetat. a) Nhiệt phân ở 650 ^{0}C, b) Nhiệt phân ở 1150 ^{0}C.*

Như vậy, giản đồ tia X đã khẳng định độ sạch của sản phẩm thu được, các mẫu bột NiO không bị lẫn các tạp chất do quá trình nhiệt phân sinh ra hoặc các tinh thể muối $Ni(CH_3COO)_2$ còn sót lại.

Kết quả phân tích cũng cho thấy, giản đồ tia X của mẫu bột thu được khi nhiệt phân ở nhiệt độ thấp (650 ^{0}C) gồm các pic có cường độ nhiễu xạ nhỏ, bị giãn rộng trên nền phông nhiễu, trong khi đó với mẫu bột tổng hợp ở nhiệt độ 1150 ^{0}C bao gồm các pic có cường độ lớn, hẹp, sắc nét. Kết hợp với kết quả tính kích thước vùng tán xạ đồng nhất D_{tx} của tinh thể NiO theo giản đồ tia X các mẫu sản phẩm thu được ở các nhiệt độ khác nhau (bảng 1) có thể đưa ra kết luận rằng, việc tăng nhiệt độ quá trình NPA sẽ làm tăng kích thước vùng tán xạ đồng nhất, cho phép thu được các hạt NiO với cấu trúc tinh thể hoàn thiện hơn.

Bảng 1. *Kích thước vùng tán xạ đồng nhất Dtx của tinh thể NiO các mẫu bột tổng hợp bằng phương pháp NPA ở các nhiệt độ khác nhau.*

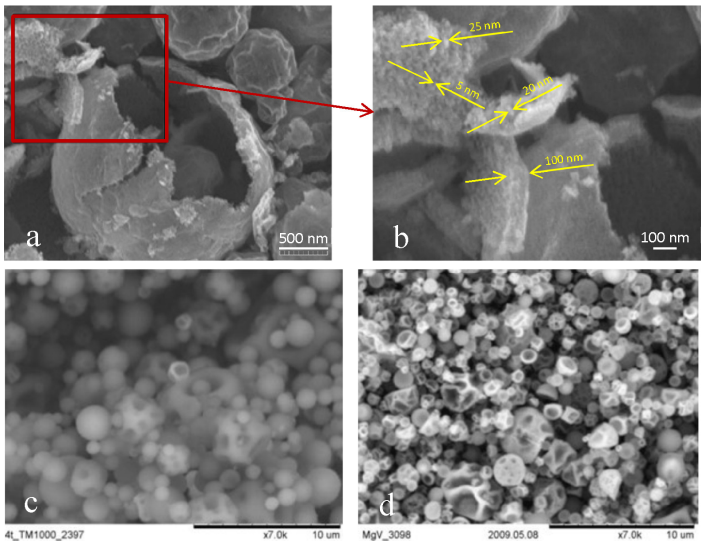
Nhiệt độ nhiệt phân (^{o}C)	650	750	850	950	1050	1150
D_{tx} (нм)	6	6	7	7	7	8

3.2. Đặc trưng về hình thái, kích thước hạt NiO và ảnh hưởng của nhiệt độ

Ảnh SEM sản phẩm bột NiO tổng hợp bằng phương pháp NPA dung dịch muối $Ni(CH_3COO)_2$ nồng độ 10 % được trình bày ở hình 4.

Kết quả phân tích ảnh SEM cho thấy, bột NiO thu được gồm các hạt chủ yếu có dạng cầu rỗng kích thước từ 500 nm đến 15 µm với lớp vỏ có độ dày cỡ 100 nm, được tạo thành từ những hạt nano NiO kích thước từ 5 – 25 nm (hình 4 a, b).

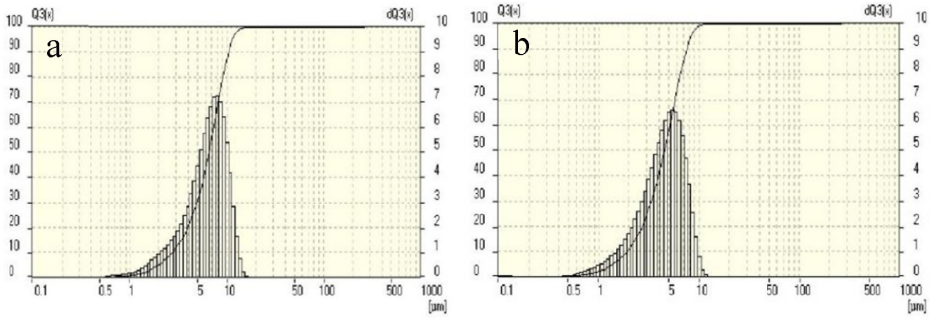
Phân tích các ảnh SEM cũng làm rõ rằng, việc tăng nhiệt độ từ 650 đến 1150 ^{o}C sẽ tạo điều kiện làm giảm kích thước các hạt cầu rỗng NiO, đồng thời tác động làm cho chúng có xu hướng chuyển hóa từ dạng cầu sang dạng mũ nấm hoặc biến dạng dị thường (dạng cầu bị bóp méo, xẹp) (hình 4 c,d). Xu hướng biến dạng này là hệ quả của việc tăng cường tốc độ các quá trình chuyển khối và chuyển nhiệt khi tách nước và nhiệt phân các hạt aerosol ở điều kiện nhiệt độ cao.



Hình 4. *Ảnh SEM bột NiO tổng hợp bằng phương pháp NPA muối niken axetat. a, b) Nhiệt phân ở 850 ^{0}C, c) Nhiệt phân ở 650 ^{0}C, d) Nhiệt phân ở 1150 ^{0}C.*

Kết quả nghiên cứu phân bố các hạt NiO theo kích thước bằng phương pháp tán xạ ánh sáng động (hình 5) là phù hợp với kết quả phân tích ảnh SEM như đã trình bày ở trên, cụ

thể các hạt cầu NiO có kích thước dao động trong khoảng 0,5 – 15 µm. Việc tăng nhiệt độ quá trình NPA làm cho đỉnh của phân bố hạt dịch chuyển về bên trái, nghĩa là làm giảm kích thước trung bình của các hạt NiO dạng cầu rỗng.



Hình 5. *Phân bố hạt theo kích thước đối với các mẫu bột NiO thu được ở a) 650 ^{0}C, b) 1150 ^{0}C.*

Kết quả xác định diện tích riêng bề mặt (S_{bm}) và kích thước trung bình (D_{tb}) các hạt nano NiO cấu tạo nên lớp vỏ của các hạt cầu rỗng bằng phương pháp BET trình bày trong bảng 2.

Bảng 2. *Diện tích riêng bề mặt và kích thước trung bình các hạt nano NiO tổng hợp bằng phương pháp NPA ở các nhiệt độ khác nhau.*

Nhiệt độ nhiệt phân (^{o}C)	650	750	850	950	1050	1150
S_{bm} (m^2/g)	177	138	88	68	63	61
D_{tb} (nm)	5	7	10	13	14	15

Kết quả thu được cho thấy, khi tăng nhiệt độ quá trình NPA trong khoảng từ 650 đến 1150 °C sẽ dẫn đến việc giảm S_{bm} bột NiO từ 177 xuống 61 m^2/g. Như vậy, có thể kiểm soát được D_{tb} của các hạt nano NiO trong khoảng tương ứng từ 5 đến 15 nm. S_{bm} các mẫu bột NiO giảm là do nhiệt độ tăng sẽ đẩy mạnh quá trình kết tụ, hợp thể hóa các hạt NiO kích thước nhỏ thành các hạt to hơn. Cần chú ý rằng, D_{tb} của các hạt nano NiO ban đầu tăng nhanh trong vùng 650 – 950 °C, sau đó tăng chậm trong vùng 950 – 1150 °C.

4. KẾT LUẬN

Bằng phương pháp nhiệt phân aerosol dung dịch muối $Ni(CH_3COO)_2$ nồng độ 10 % trong nước đã tổng hợp thành công bột NiO dạng cầu rỗng có cấu trúc nano.

Sử dụng các phương pháp nghiên cứu hiện đại cho thấy, sản phẩm thu được sau quá trình nhiệt phân là bột NiO sạch, có thành phần đơn pha NiO cấu trúc lập phương diện tâm (fcc), với hình dạng cầu rỗng kích thước từ 500 nm đến 15 µm. Các hạt cầu rỗng NiO có lớp vỏ có dày cỡ 100 nm được hình thành từ những hạt nano kích thước trong khoảng 5 – 25 nm.

Đã nghiên cứu tác động ảnh hưởng của nhiệt độ quá trình NPA lên các đặc trưng về thành phần, cấu trúc, hình thái và kích thước của bột nano NiO thu được. Kết quả cho thấy, việc tăng nhiệt độ quá trình NPA sẽ làm tăng kích thước vùng tán xạ đồng nhất, cho phép thu được pha NiO với cấu trúc tinh thể hoàn thiện hơn.

Việc điều chỉnh nhiệt độ quá trình nhiệt phân từ 650 đến 1150 ºC cho phép kiểm soát kích thước trung bình của các hạt nano NiO từ 5 đến 15 nm, giảm kích thước các hạt cầu rỗng, đồng thời tác động làm cho chúng có xu hướng chuyển hóa từ dạng cầu sang dạng mũ nấm hoặc biến dạng dị thường (dạng cầu bị bóp méo, xẹp), đây là hệ quả của việc tăng cường quá trình chuyển khối và chuyển nhiệt khi tách nước và nhiệt phân các hạt aerosol ở điều kiện nhiệt độ cao.

Đây là kết quả mới có thể mở ra triển vọng chế tạo bột NiO cấu trúc nano bằng phương pháp nhiệt phân aerosol tương đối đơn giản và hiệu quả, với khả năng điều chỉnh các tham số công nghệ quá trình nhiệt phân để thu được bột với các đặc trưng tính chất mong muốn. Sản phẩm thu được có dạng cầu rỗng, diện tích riêng bề mặt cao (độ phân tán cao) hoàn toàn có thể được ứng dụng trong công nghiệp sơn phủ, xúc tác, hấp phụ v.v., đặc biệt là có thể tiến hành nghiên cứu thăm dò khả năng sử dụng làm vật liệu điện cực hiệu suất cao trong pin Li-ion thế hệ mới.

***Lời cảm ơn**: Nhóm tác giả trân trọng cám ơn phòng thí nghiệm Bộ môn các hệ thống nano chức năng và vật liệu nhiệt độ cao, Trường Đại học Nghiên cứu công nghệ Quốc gia MISiS, TP Matxcova, LB Nga đã tạo điều kiện tốt về trang thiết bị và tài chính cho nghiên cứu này.*

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1]. B. Bhushan, "*Springer Handbook of Nanotechnology. 4th edition,*" Berlin: Springer-Verlag Heidelberg (2017), 1500 p.

[2]. Y. Dahman, "*Nanotechnology and Functional Materials for Engineers,*" Elsevier-Health Sciences Division (2017), 282 p.

[3]. D. S. Garba, Y. Abubakar, S. Suleiman, "*Nickel Oxide (NiO) Devices and Applications: A Review,*" International Journal of Engineering and Technical Research, **Vol. 8**, No. 4 (2019), pp. 461-467.

[4]. M. El-Kemary, N. Nagy, I. El-Mehasseb, "*Nickel oxide nanoparticles: Synthesis and spectral studies of interactions with glucose,*" Materials Science in Semiconductor Processing, **Vol. 16**, No. 6 (2013), pp. 1747-1752.

[5]. D. A. Gkika *et al*. "*Price tag in nanomaterials?,*" J Nanopart Res, **Vol. 19** (2017), pp. 177-183.

[6]. S. R. Ardekani *et al*. "*A comprehensive review on ultrasonic spray pyrolysis technique: Mechanism, main parameters and applications in condensed matter*," Journal of Analytical and Applied Pyrolysis, **Vol. 141** (2019), pp. 104631-104649.

[7]. D. S. Jung *et al*. "*Design of particles by spray pyrolysis and recent progress in its application,*" Korean J. Chem. Eng., **Vol. 27**, No. 6 (2010), pp. 1621-1645.

[8]. N. E. Kiratzis. "*Applications of the technique of solution aerosol thermolysis (SAT) in solid oxide fuel cell (SOFC) component fabrication,*" Ionics, **Vol. 22** (2016), pp. 751-770.

[9]. C. R. R. Almeida *et al*. "*One-step synthesis of CaMoO4: Eu^{3+} nanospheres by ultrasonic spray pyrolysis,*" J Mater Sci: Mater Electron, **Vol. 28** (2017), pp. 16867-16879.

[10]. W. K. Huang *et al*. "*Carbon nanomaterials synthesized using a spray pyrolysis method,*" Vacuum, **Vol. 118** (2015), pp. 94-99.

[11]. A. Annubhawi *et al*. "*Carbon nanotube using spray pyrolysis: Recent scenario,*" Journal of Alloys and Compounds, **Vol. 691** (2016), pp. 970-982.

[12]. Ю. А. Котов *et al*. "*Характеристики нанопорошков оксида никеля, полученных электрическим взрывом проволоки,*" Журнал технической физики, **Т. 75**, № 10 (2005), С. 39-43.

[13]. H. Qiao *et al*. "Preparation and Characterization of NiO Nanoparticles by Anodic Arc Plasma Method," Journal of Nanomaterials, **Vol. 2009** (2009), pp. 1-5.

[14]. В. М. Нгуен и др. "*Особенности получения нанодисперсных и микронных никелевых порошков водородным восстановлением в вихревом магнитном поле,*" Известия вузов. Порошковая металлургия и функциональные покрытия, **№ 1** (2016), С. 4-11.

[15]. K. Gopalu, A. G. Yudin, M. Jagathambal, A. R. Mandal, N. V. Minh, A. A. Gusev, E. Kolesnikov and D. Kuznetsov. "*Synthesis of five metal based nanocomposite via ultrasonic high temperature spray pyrolysis with excellent antioxidant and antibacterial activity,*" RSC Adv., **Vol. 6** (2016), pp. 37628-37632.

[16]. M. Kundu, G. Karunakaran, S. Kumari, Nguyen Van Minh *et al*. "*One-pot ultrasonic spray pyrolysis mediated hollow $Mg_{0.25}Cu_{0.25}Zn_{0.5}Fe_2O_4/NiFe_2O_4$ nanocomposites: A promising anode material for high-performance lithium-ion battery,*" Journal of Alloys and Compounds, **Vol. 725** (2017), pp. 665-672.

[17]. R. L. Peskin, R. J. Raco. "*Ultrasonic atomization of liquids,*" The Journal of the Acoustical Society of America, **Vol. 35** (1963), pp. 1378-1381.

[18]. V. Jokanovic *et al.* "*Synthesis and Formation Mechanism of Ultrafine Spherical Al_2O_3 Powders by Ultrasonic Spray Pyrolysis,*" Materials transactions JIM, **Vol. 37** (1996), pp. 627-635.

[19]. S. Che *et al*. "*Particle structure control through intraparticle reactions by spray pyrolysis,*" Journal of Aerosol Science, **Vol. 29**, No. 3 (1998), pp. 271-278.

[20]. A. Yudin *et al*. "*Synthesis of hollow nanostructured nickel oxide microspheres by ultrasonic spray atomization,*" Journal of Aerosol Science, **Vol. 98** (2016), pp. 30-40.

[21]. А. П. Белослудцев и др. "*Влияние состава исходного раствора на морфологию наночастиц оксида никеля, получаемых методом пиролиза аэрозолей,*" Вестник Московского университета. Серия 2. Химия, **Т. 53**, № 5 (2012), С. 339-343.

[22]. K. N. Kim, S. G. Kim. "*Nickel particles prepared from nickel nitrate with and without urea by spray pyrolysis,"* Powder Technology, **Vol. 145**, No. 3 (2004), pp. 155-162.

[23]. B. D. Cullity, S. R. Stock. "*Elements of X-Ray Diffraction, 3rd Ed.,*" Prentice-Hall Inc. (2001), pp. 167-171.

ABSTRACT

PREPARATION OF NANOSTRUCTURED HOLLOW-SPHERE FORMED NiO POWDER BY AEROSOL PYROLYSIS METHOD

In this work, the nanostructured hollow-sphere formed nickel oxide (NiO) powder was synthesized via aerosol pyrolysis of 10 wt. % nickel acetate aqueous solution. The effect of pyrolysis temperature on dimensional and morphological characteristics of nickel oxide nanostructured hollow spheres was enlighted. The obtained NiO powder was investigated by methods of low-temperature nitrogen adsorption (BET), X-ray diffraction, scanning electron microscopy (SEM) and particle size class analysis using dynamic light scattering. The results of the study showed that the synthesized product was a single-phase NiO powder with a face-centered cubic structure (fcc) in the form of hollow microspheres ranging in size from 500 nm to 15 μm with a shell thickness of about 100 nm, which consists of nanoparticles with sizes in the range of 5 – 25 nm. Adjusting pyrolysis temperature from 650 to 1150 ºC allows to control the average size of NiO nanoparticles from 5 to 15 nm, reducing the size of hollow spheres, improving the crystalline structure, and also leads to their tendency of transformation from a spherical shape to mushroom caps or an irregular shape. This is a consequence of the intensification of mass- and heat transfer processes at high temperatures.

Keywords: Nanostructure; Aerosol pyrolysis; Nickel oxide powder (NiO); X-ray; BET; SEM.

Nhận bài ngày 07 tháng 02 năm 2020
Hoàn thiện ngày 05 tháng 3 năm 2020
Chấp nhận đăng ngày 12 tháng 6 năm 2020

Địa chỉ: [1]Viện Công nghệ, TCCNQP;
[2]Đại học Nghiên cứu Công nghệ Quốc gia MISiS, TP Matxcova, LB Nga.
*Email: chinhnhan88@gmail.com.