

Импедансная спектроскопия и механизм газочувствительности наночистов $g-C_3N_4$ к парам изопропанола

К. Д. Буй

Санкт-Петербургский государственный
электротехнический университет
«ЛЭТИ» им. В.И. Ульянова (Ленина)

congdoan6997@gmail.com

С. С. Налимова

Санкт-Петербургский государственный
электротехнический университет
«ЛЭТИ» им. В.И. Ульянова (Ленина)

sskarpova@list.ru

Аннотация. В данной работе исследованы электрофизические и газочувствительные свойства двумерных наночистов $g-C_3N_4$, синтезированных методом термической поликонденсации с последующей ультразвуковой эксфолиацией, при детектировании паров изопропанола методом импедансной спектроскопии. Результаты подтверждают, что доминирующим механизмом сенсорного отклика является модуляция сопротивления переноса заряда вследствие хемосорбции молекул изопропанола при неизменных емкостных характеристиках.

Ключевые слова: графитоподобный нитрид углерода, газовый сенсор, импедансная спектроскопия, хеморезистивный эффект

I. ВВЕДЕНИЕ

Обнаружение летучих органических соединений (ЛОС) имеет большое значение для промышленной безопасности, медицинской диагностики и контроля качества пищевых продуктов [1–3].

Традиционные сенсоры на основе полупроводниковых оксидов металлов [4–9] характеризуются высокими рабочими температурами и энергопотреблением [10–13].

Графитоподобный нитрид углерода ($g-C_3N_4$) – это недорогой двумерный полупроводник с шириной запрещенной зоны 2,7 эВ, высокой термической и химической стабильностью [14–16]. Его слоистая структура обеспечивает высокую удельную площадь поверхности (50–200 м²/г) с активными центрами, повышая эффективность взаимодействия с молекулами газа. Несмотря на потенциал $g-C_3N_4$ для газовых сенсоров, механизм переноса заряда в чистом 2D материале при контакте с молекулами спирта остается недостаточно изученным по сравнению с его композитами [17, 18].

Изучить динамику переноса заряда и механизм чувствительности позволяет электрохимическая импедансная спектроскопия (ЭИС) [19–23]. Однако применение ЭИС для изучения характеристик газовых сенсоров на основе чистого $g-C_3N_4$ остается открытым вопросом.

В данной работе были синтезированы 2D наночисты $g-C_3N_4$ и исследованы их газочувствительные свойства к парам изопропанола (ИПА). Основной результат работы заключается в изучении механизма переноса заряда с

помощью анализа ЭИС для описания процесса чувствительности к спиртам. Использование для моделирования эквивалентная схема состоит из параллельно соединенных сопротивления переноса заряда R_{ct} и элемента постоянной фазы CPE. В исследовании объяснены взаимодействие и процесс переноса заряда между молекулами изопропанола и чувствительным слоем $g-C_3N_4$.

II. ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ

A. Метод синтеза

10 г мочевины помещали в герметичный тигель и подвергали термической поликонденсации при температуре 550°C в течение 4 часов. Полученный порошок промывали до нейтрального pH. Затем осадок сушили при температуре 80°C в течение 12 часов для получения чистого объемного порошка $g-C_3N_4$.

Для расслоения и получения суспензии порошок $g-C_3N_4$ диспергировали в дистиллированной воде с использованием ультразвуковой обработки в течение 1 часа.

Данную суспензию наносили на подложку с электродами с помощью центрифуги. Последующая термическая обработка при 450°C в течение 30 мин обеспечила высокую адгезию и прочностью.

B. Метод исследования чувствительных свойств

Исследование газочувствительных свойств синтезированных слоев 2D $g-C_3N_4$ к парам изопропанола проводилось с использованием измерительного комплекса, разработанного на кафедре МНЭ СПбГЭТУ «ЛЭТИ». Формирование газовых смесей заданной концентрации осуществлялось путем смешивания целевого пара и очищенного воздуха с помощью регуляторов массового расхода.

Спектр импеданса регистрировался прибором Z-500P в диапазоне частот 1–500 кГц при амплитуде переменного тока 255 мВ и напряжении смещения 1 В.

III. РЕЗУЛЬТАТЫ

Результаты анализа ЭИС показывают динамику переноса заряда между наночистами $g-C_3N_4$ при взаимодействии с парами изопропанола при температуре 250°C. На рис. 1 представлены диаграммы Найквиста образца 2D $g-C_3N_4$ при различных концентрациях

изопропанола. Также на рис. 2 показаны диаграммы амплитуды Боде.

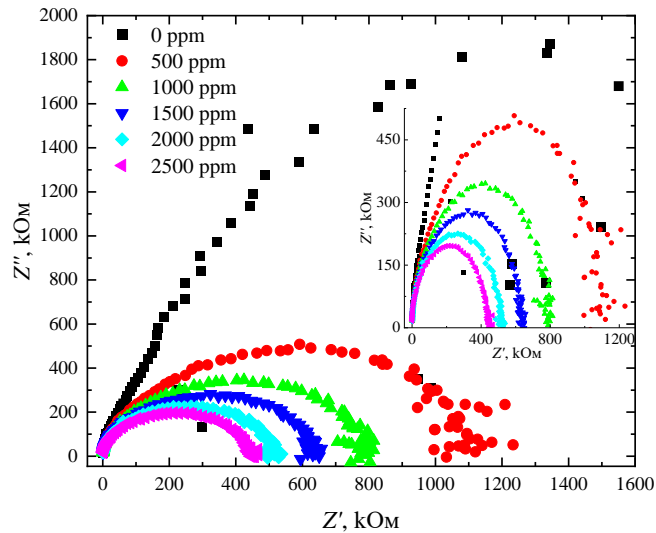


Рис. 1. Диаграммы Найквиста

Спектры импеданса образца 2D $g-C_3N_4$ проанализированы с помощью модели эквивалентной схемы. В данной модели сопротивление переноса заряда R_{ct} и элемент постоянной фазы CPE соединены параллельно. Элемент CPE, в отличие от конденсатора, учитывает неидеальную емкость материала, обусловленную пористой и неоднородной поверхностью 2D наноструктуры $g-C_3N_4$.

Импеданс элемента постоянной фазы выражается уравнением [24]:

$$Z_{CPE} = \frac{1}{Q \times (j2\pi f)^\alpha}$$

где Q – фактор пропорциональности ($Om^{-1} \cdot c^\alpha$), α – экспоненциальный показатель, обозначающий фазовое отклонение ($0 \leq \alpha \leq 1$), f – частота переменного тока, j – мнимая единица.

На диаграммах Найквиста наблюдаются полуокружности, центры которых смещены ниже оси абсцисс. С ростом концентрации ИПА радиус указанных полуокружностей уменьшается.

- В воздушной среде сопротивление R_{ct} достигает $1,6 M\Omega$, проводя к ограничению переноса электронов в отсутствие паров ИПА.
- При подаче паров ИПА значение R_{ct} падает с $11,3 \times 10^5 \Omega$ (500 ppm) до $4,52 \times 10^5 \Omega$ (2500 ppm). Адсорбция молекул ИПА и окислительно-восстановительные реакции обеспечивают возврат захваченных электронов обратно в зону проводимости $g-C_3N_4$.

Диаграммы Боде демонстрируют снижение модуля импеданса $|Z|$ по мере увеличения концентрации ИПА. В низко- и среднечастотном диапазоне преобладают процессы взаимодействия газа с поверхностью нанолистов. На частоте 1 кГц $|Z|$ падает с $3,5 M\Omega$ (без ИПА) до $1,3 M\Omega$ (2500 ppm).

На табл. I представлены рассчитанные параметры эквивалентной схемы, полученные из спектров

импеданса сенсора $g-C_3N_4$ при воздействии ИПА с различной концентрацией.

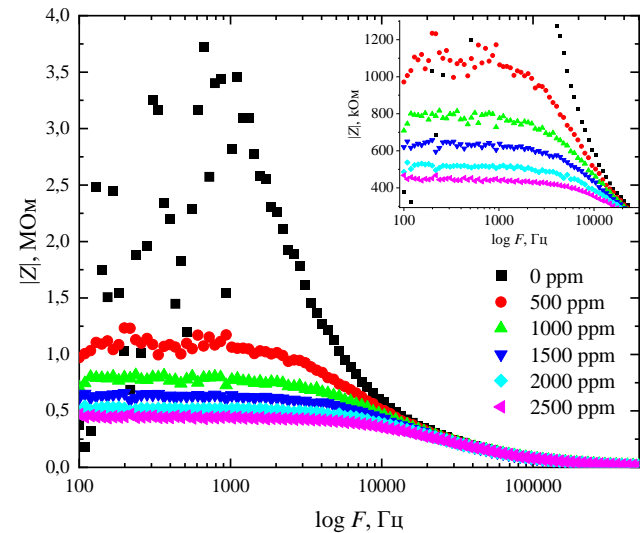


Рис. 2. Диаграммы амплитуды Боде

Результаты моделирования показали, что фактор пропорциональности элемента CPE Q и экспоненциальный показатель α (0,875) остаются неизменными во всем диапазоне концентраций ИПА. Емкостной отклик на границе раздела фаз стабилизируют и определяется внутренним строением $g-C_3N_4$, не зависящим от присутствия целевого газа.

ТАБЛИЦА I. ПАРАМЕТРЫ ЭКВИВАЛЕНТНОЙ СХЕМЫ

Концентрация, ppm	$R_{ct}, 10^5 \Omega$	$Q, 10^{-10} Om^{-1} \cdot c^\alpha$	α
500	11,3	1	0,875
1000	8,02	1	0,875
1500	6,47	1	0,875
2000	5,26	1	0,875
2500	4,52	1	0,875

По данным, представленным в табл. 1, наблюдается систематическое снижение сопротивления R_{ct} при увеличении концентрации ИПА. Это подтверждает, что перенос электронов от адсорбированных газовых молекул служит доминирующим механизмом сенсорного отклика 2D $g-C_3N_4$. На рисунке 3 продемонстрирован пример моделирования диаграммы Найквиста образца при подаче ИПА с концентрацией 500 ppm.

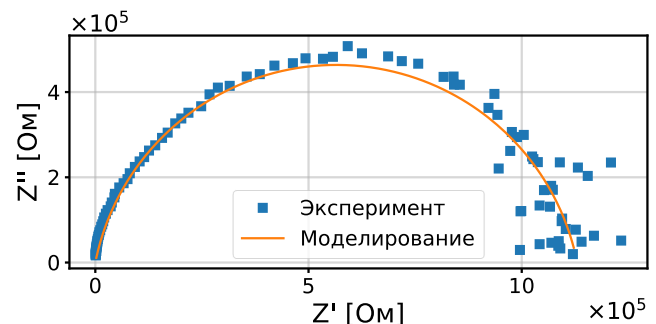


Рис. 3. Моделирование диаграммы Найквиста 2D $g-C_3N_4$ в присутствии ИПА с концентрацией 500 ppm

Показанная полуокружность с высокой точностью аппроксимируется предложенной моделью

эквивалентной схемы с использованием элемента постоянной фазы (CPE).

IV. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе данной работы были синтезированы нанолисты 2D $g\text{-C}_3\text{N}_4$ методом термической поликонденсации с последующей ультразвуковой эксфолиацией. Также были изучены их электрофизические и газочувствительные свойства при детектировании паров ИПА. Применение метода ЭИС позволило проанализировать механизм сенсорного отклика и динамику переноса заряда на границе раздела фаз.

Результаты исследования подтверждают, что доминирующим механизмом газочувствительности 2D наноллистов $g\text{-C}_3\text{N}_4$ к парам ИПА служит модуляция сопротивления переноса заряда индуцированной адсорбцией газовых молекул, в то время как емкостные характеристики не изменяются.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] От Нанотехнологии К Наноархитектонике: Сборник научных Трудов. Выпуск 1 / Под Ред. Д.А. Козодаева. –УФА: АЭТЕРНА, 2024. 168 с.
- [2] Nalimova S.S., Shomakhov Z.V., Kozodaev D.A., Rybina A.A., Buzovkin S.S., Bui C.D., Novikov I.A., Moshnikov V.A. VOC Gas Sensors Based on Zinc Stannate Nanoparticles Decorated with Silver // *Nanomaterials*. 2024. Т. 14, № 24. С. 1993.
- [3] Bui C.D., Nalimova S., Kondratev V., Shomakhov Z., Kirillova S., Maximov A., Moshnikov V. Alcohol Sensing Behavior and Impedance Spectroscopy Characterization of $g\text{-C}_3\text{N}_4$ Nanosheets // *Nanomaterials*. 2026. Т. 16, № 3. С. 213.
- [4] Давиденко В.А., Толстяк Г.В., Баян Е.М., Петров В.В. Анализ чувствительности сенсоров на основе пленок La-SnO_2 к парам этанола // *Письма в Журнал технической физики*. 2025. Т. 51, вып. 24. С. 69–72.
- [5] Gulyaeva I.A., Ivanisheva A.P., Volkova M.G., Storozhenko V.Y., Khubezhov S.A., Bayan E.M., Petrov V.V. Investigation of electrophysical, photo- and gas-sensitive properties of ZnO-SnO_2 sol-gel films // *Journal of Advanced Dielectrics*. 2024. Т. 14, № 1. С. 2245002.
- [6] Solomatin M.A., Fedorov F.S., Kirilenko D.A., Trouillet V., Varezchnikov A.S., Kiselev I.V., Geckle U., Sommer M., Bainyashev A.M., Artemov V., Ushakov N.M., Goffman V.G., Rabchinskii M.K., Nasibulin A.G., Sysoev V.V. Bottom-up designing nanostructured oxide libraries under a lab-on-chip paradigm towards a low-cost highly-selective e-nose // *Analytica Chimica Acta*. 2025. Т. 1333. С. 343387.
- [7] Yuan Ch., Ma Ju., Zou Y., Li G., Xu H., Sysoev V.V., Cheng X., Deng Y. Modeling interfacial interaction between gas molecules and semiconductor metal oxides: a new view angle on gas sensing // *Advanced Science*. 2022. Т. 9, № 33. С. 2203594.
- [8] Dobrovolskii A.A., Mikhaylov A.A., Prihodchenko P.V., Lev O., Zhestsianikau R., Platonov V.B., Filatova D.G., Rummyantseva M.N. Hydrogen peroxide assisted sol-gel synthesis of 2D SnO_2 for H_2 detection in low concentration range // *International Journal of Hydrogen Energy*. 2026. Т. 198. С. 152800.
- [9] Marikutsa A., Murodova Sh., Rummyantseva M. Sensitivity of nanocrystalline orthorhombic and hexagonal MoO_3 to ammonia in relation to surface acidity // *Sensors and Actuators B: Chemical*. 2026. Т. 448. С. 139067.
- [10] Nalimova S.S., Shomakhov Z.V., Zyryanova O.D., Kondratev V.M., Bui C.D., Gurin S.A., Moshnikov V.A., Zhilenkov A.A. $\text{WO}_3\text{-x}/\text{WS}_2$ Nanocomposites for Fast-Response Room Temperature Gas Sensing // *Molecules*. 2025. Т. 30, № 3. С. 566.
- [11] Yang J., Sun R., Bao X., Liu J., Ng J.W., Tang B., Liu Z. Enhancing Selectivity of Two-Dimensional Materials-Based Gas Sensors // *Advanced Functional Materials*. 2025. Т. 35. С. 2420393.
- [12] Wang J., Wang R. Development of Gas Sensors and Their Applications in Health Safety, Medical Detection, and Diagnosis // *Chemosensors*. 2025. Т. 13, № 2. С. 190.
- [13] Bhati V.S., Takhar V., Raliya R., Kumar M., Banerjee R. Recent Advances in $g\text{-C}_3\text{N}_4$ Based Gas Sensors for the Detection of Toxic and Flammable Gases: A Review // *Nano Express*. 2022. Т. 3. С. 014003.
- [14] Wang B., Gu Y., Chen L., Ji L., Zhu H., Sun Q. Gas sensing devices based on two-dimensional materials: A review // *Nanotechnology*. 2022. Т. 33, № 25. С. 252001.
- [15] Буй К.Д., Налимова С.С., Нгуен В.Т.А. Графитоподобный нитрид углерода: свойства и применение в газовой сенсорике. Обзор // *Конденсированные среды и межфазные границы*. 2025. Т. 27, № 2. С. 177–189.
- [16] Буй К.Д., Налимова С.С., Мошников В.А., Нгуен Д.Т., Нгуен В.Т.А. Подходы к синтезу $g\text{-C}_3\text{N}_4$ для межфазного молекулярного дизайна в перовскитных солнечных элементах // *Нано- и микросистемная техника*, 2024. Т. 26. № 3. С. 136–144.
- [17] Wang Q., Li Y., Huang F., Song S., Ai G., Xin X., Zhao B., Zheng Y., Zhang Z. Recent Advances in $g\text{-C}_3\text{N}_4$ -Based Materials and Their Application in Energy and Environmental Sustainability // *Molecules*. 2023. Т. 28, № 1. С. 432.
- [18] Pei J., Li H., Zhuang S., Zhang D., Yu D. Recent Advances in $g\text{-C}_3\text{N}_4$ Photocatalysts: A Review of Reaction Parameters, Structure Design and Exfoliation Methods // *Catalysts*. 2023. Т. 13, № 12. С. 1402.
- [19] Bobkov A., Luchinin V., Moshnikov V., Nalimova S., Spivak Y. Impedance Spectroscopy of Hierarchical Porous Nanomaterials Based on por-Si, por-Si Incorporated by Ni and Metal Oxides for Gas Sensors // *Sensors*. 2022. Т. 22, № 4. С. 1530.
- [20] Sen S., Maity S., Kundu S. Fabrication of Fe Doped Reduced Graphene Oxide (rGO) Decorated WO_3 Based Low Temperature Ppm Level Acetone Sensor: Unveiling Sensing Mechanism by Impedance Spectroscopy // *Sensors and Actuators B: Chemical*. 2022. Т. 361. С. 131706.
- [21] Balasubramani V., Chandreleka S., Rao T.S., Sasikumar R., Kuppasamy M.R., Sridhar T.M. Review—Recent Advances in Electrochemical Impedance Spectroscopy Based Toxic Gas Sensors Using Semiconducting Metal Oxides // *Journal of the Electrochemical Society*. 2020. Т. 167, № 3. С. 037572.
- [22] Kim J.-Y., Bharath S.P., Mirzaei A., Kim S.S., Kim H.W. Recognition and Quantification of Different VOCs by Using Impedance-Spectroscopy-Based Gas Sensors // *Sensors and Actuators B: Chemical*. 2025. Т. 443. С. 138298.
- [23] Kedruk Y.Y., Bobkov A.A., Gritsenko L.V., Moshnikov V.A. Investigation of the Properties of Zinc Oxide by the Method of Impedance Spectroscopy // *Glass Physics and Chemistry*. 2022. Т. 48, № 2. С. 123–129.
- [24] Murbach M., Gerwe B., Dawson-Elli N., Tsui L.-K. Impedance.Py: A Python Package for Electrochemical Impedance Analysis // *Journal of Open Source Software*. 2020. Т. 5. С. 2349.