

Аминированные графитные углеродные точки для фотокаталитической генерации водорода

Митрошин А.М. (ИТМО)

Научный руководитель – кандидат физико-математических наук, Кунделев Е.В. (ИТМО)

Введение. Ключевым требованием для создания устойчивой фотокаталитической системы для генерации водорода является разработка эффективных и недорогих светопоглотителей [1]. Углеродные точки (УТ) являются перспективными аналогом для замены традиционно используемых фотопоглотителей в фотокаталитических системах [2]. УТ могут быть легко получены из доступных веществ, а также обладают низкой токсичностью. Поверхность УТ зачастую покрыта аминами, гидрокси или карбоксильными группами, что делает их гидрофильными. Для УТ характерно спектральное поглощение вплоть до ближнего инфракрасного диапазона. Несмотря на то, что по совокупности актуальных фотокаталитических параметров УТ либо сравнимы, либо лучше своих аналогов, существуют пути улучшения их физических характеристик. Одним из основных ограничивающих факторов, влияющих на квантовый выход образования H_2 в фотокаталитических системах на основе УТ, является короткое время жизни большинства (до 90%) начальных возбужденных состояний, лежащих в пико-наносекундном масштабе времени, тогда как перенос заряда на катализатор в таких системах осуществляется на более длительных временах. Следовательно, представляется принципиально важным разработать УТ с более долгоживущими возбужденными состояниями. Также для повышения эффективности переноса заряда на катализатор является важным модификация поверхности УТ для дальнейшей настройки взаимодействия углеродных точек с катализатором.

Основная часть. В работе были получены фотопоглотители в виде графитных и аминированных графитных УТ путем пиролиза лимонной кислоты при температуре 320°C. Аминированные графитные УТ были получены из исходных графитных УТ в результате дополнительной обработки их поверхности, заключающейся в ковалентном связывании с диметилэтилендиамином (DMEN). Состав, морфология УТ были исследованы с помощью атомно-силовой спектроскопии, спектроскопии инфракрасного поглощения, а также рамановской спектроскопии. Применение спектроскопии UV-VIS поглощения и люминесцентной спектроскопии позволило исследовать оптические свойства полученных УТ. В качестве катализатора в фотокаталитической системе был выбран молекулярный катализатор генерации водорода (NiP) с высокоэлектроактивным ядром типа Дюбуа $[Ni(P_2N_2)_2]^{2+}$, содержащем гидрофильные фосфоновые группы во внешней координационной сфере. Фотокаталитические исследования проводились при смешивании УТ и катализаторов типа Дюбуа в водной среде (рН 6).

Выводы. Установлено влияние поверхностных групп УТ, длины спейсеров, а также заряда графитных УТ на фотокаталитическую генерацию водорода.

Финансирование. Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 22-73-00141.

Список использованных источников:

1. Cook T. R., Dogutan D. K., Reece S. Y., Surendranath Y., Teets T. S., Nicera D. G. Solar Energy Supply and Storage for the Legacy and Nonlegacy Worlds // Chemical Reviews. – 2010. – № 110(11). – С. 6474–6502.
2. Xu R., Ray R., Gu Y., Ploehn H. J., Gearheart L., Raker K., Scrivens W. A. Electrophoretic Analysis and Purification of Fluorescent Single-Walled Carbon Nanotube Fragments // Journal of American Chemical Society. – 2004. – № 126(40). – С. 12736–6502.