



(12)

BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2017 01134**

(22) Data de depozit: **18/12/2017**

(45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **28/01/2022** BOPI nr. 1/2022

(41) Data publicării cererii:
30/07/2019 BOPI nr. 7/2019

(73) Titular:
• **INSTITUTUL NAȚIONAL DE
CERCETARE- DEZVOLTARE PENTRU
TEHNOLOGII CRIOGENICE ȘI IZOTOPICE,**
STR.UZINEI NR.4, O.P.RÂURENI C.P.7,
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO

(72) Inventatori:
• **MARINOIU ADRIANA,**
STR.TUDOR VLADIMIRESCU NR.93, SC.A,
ET.2, AP.5, BĂILE GOVORA, VL, RO;
• **RACEANU MIRCEA,** STR.MUZICII,
BL.RO3, ET.1, AP.8, RÂMNICU VÂLCEA,
VL, RO;
• **CAPRIS CĂTĂLIN,** STR.NICOLAE IORGA
NR.23, BL.ANL4, SC.A, AP.1,
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;

• **CARCADEA ELENA,** CALEA LUI TRAIAN
NR.60, BL.S31, SC.A, ET.4, AP.13,
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;
• **ION SIMONA FILOFTEIA,** STR.STRAJA
NR.12, BL.52, SC.A, ET.4, AP.25,
SECTOR 4, BUCUREȘTI, B, RO;
• **VARLAM MIHAI,** STR. VASILE
OLĂNESCU NR. 14, BL.C10, SC.B, ET.1,
AP.13, RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO

(56) Documente din stadiul tehnicii:
**SERGEY STOLBOV AND MARISOL
ALCANTARA ORTIGOZA, "GOLD-DOPED
GRAPHENE: A HIGHLY STABLE AND
ACTIVE ELECTROCATALYST FOR THR
OXYGEN REACTION", DEPARTMENT OF
PHYSICS, UNIVERSITY OF CENTRAL
FLORIDA, VOL. 142, P. 154703, ORLANDO,
2015,CN 103769583 (A), US 2015198886
(A)**

(54) **PROCEDEU DE OBȚINERE A UNUI NANOCOMPOZIT
PE BAZĂ DE GRAFENE DOPATE CU AUR**



RO 133529 B1

1 Invenția se referă la un procedeu de obținere a unui compozit pe bază de grafene și
nanoparticule metalice de aur, utilizat pentru modificarea electrodului de reducere a oxige-
3 nului în pilele de combustibil tip PEM (proton exchange membrane fuel cells PEMFCs).

5 Cu toate că grafena este încă un membru relativ nou în familia materialelor car-
bonice, proprietățile sale cum ar fi suprafața specifică mare, conductivitatea electrică ridicată,
7 proprietățile mecanice excelente, precum și stabilitatea chimică ridicată, o fac un suport
electrocatalitic ideal pentru PEMFC.

9 Este cunoscut din articolul ***Gold-doped graphene: A highly stable and active electrocatalysts for the oxygen reduction reaction, Sergey Stolbova and Marisol Alcántara Ortigozab, The Journal of chemical physics, 142, 154703, 2015***, un grafen
11 dopat cu aur: un electrocatalizator foarte stabil, rentabil și activ decât cei mai cunoscuți
electrocatalizatori pe bază de Pt.

13 De asemenea este cunoscută din cererea de brevet **CN 103769583 (A)** o metodă de
preparare a unei nanoparticule de aur modificate prin puncte cuantice de grafen, în care
15 nanoparticula de aur a cărei suprafață este modificată de punctele cuantice de grafen este
preparată prin utilizarea acidului cloroauric ca sursă de aur, punctele cuantice de grafen ca
17 aditivi și citrat de sodiu ca agent de reducere.

19 Sunt cunoscute din cererea de brevet **US 2015198886 (A)** nanoparticule de aur
depuse pe grafen cu un singur strat și include un strat purtător ca substrat; un strat de grafen
21 pe stratul purtător și o multitudine de nanoparticule de aur distribuite uniform pe stratul de
grafen.

23 Electrocatalizatorii pe suport grafenic au aplicații promițătoare în pilele de combustibil
și prezintă performanțe catalitice excelente pentru oxidarea combustibilului sau reducerea
oxigenului. Cu toate acestea, există încă un drum lung pentru a implementa aplicațiile lor în
25 dispozitive electrochimice comerciale. Mai multe eforturi trebuie să fie dedicate sintezei
scalabile și reproductibile, cu accent pe controlul compoziției și morfologiei, precum și pe
27 investigații asupra proprietăților și mecanismului catalitic. În general, nanoelectrocatalizatorii
pe bază de grafenă pot fi clasificați în următoarele tipuri, în funcție de compoziție: (1) electro-
29 catalizatori metale nobile suportați pe grafenă, incluzând metalele Pt, Pd, Au și aliaje; (2)
electrocatalizatori nemetalici; (3) electrocatalizatori fără Pt suportați pe grafenă, incluzând
31 metalele de tranziție și oxizii acestora, nanomateriale sulfide și complecși metalici. Deși elec-
trocatalizatorii pe bază de Pt sunt cei mai activi și populari catalizatori pentru PEMFC, comer-
33 cializarea acestora este încă restricționată de costul ridicat, durabilitatea scăzută dar și
cinetica lentă a transferului de electroni la catodul pilei, unde are loc reacția de reducere a
35 oxigenului (ORR). Actual, supratensiunile mari de la ORR pe majoritatea electrocatalizatorilor
catodici apar, în principal, din cauza cineticii lente de transfer de electroni datorate adsorbției
37 puternice a oxigenului pe catalizatori, prin urmare, slăbirea energiei de adsorbție poate
îmbunătăți eficiența ORR.

39 Este cunoscut faptul că activitatea catalitică a nanocristalelor metalice este strâns
legată de structura, dimensiunea, compoziția și fațeta de cristal expusă etc. Deși cristalitele
41 metalice nesuportate cu o dimensiune și formă bine controlată, pot fi sintetizate cu ușurință
prin diferite strategii de sinteză chimică și fizică, multe dintre cristalele de metal pe suport de
43 grafenă sunt de formă sferică, fiind obținute doar câteva tipuri de nanocristale grafenice cu
formă controlată. Prin urmare, pentru a îmbunătăți performanța catalitică, modul de sinteză
45 și de control al morfologiei nanocatalizatorilor suportați pe grafenă, rămân probleme critice
în domeniu. Mai mult decât atât, durabilitatea catalizatorilor pe bază de grafenă este de o
47 importanță crucială pentru aplicarea practică a acestora în pilele de combustibil reale. Prin
urmare, modul de îmbunătățire a stabilității electrochimice a catalizatorilor pe bază de
49 grafenă, este o altă problemă critică.

Defectele și grupările funcționale prezente pe suprafața grafenei diminuează limitările descrise mai sus întrucât pot imobiliza nanocatalizatorii, având ca rezultat o stabilitate îmbunătățită a catalizatorilor hibridi pe bază de grafenă. Grafena cu defecte de structură, de exemplu oxidul de grafenă poate furniza situri pentru ancorarea și fixarea nanoparticulei adsorbite, prin formarea interacției puternice substrat-metal. Această interacțiune nu îmbunătățește doar stabilitatea, dar poate ajusta și banda d a nanoparticulelor depuse, rezultând un efect puternic asupra adsorbției oxigenului.

Mediul acid specific operării în PEMFC necesită alternative limitate pentru materialele care pot fi utilizate ca și electrocatalizatori ORR. Sunt recomandate doar trei elemente cu potențial de dizolvare mai mare decât potențialul de funcționare al pilei combustibil de ~ 0,8-1,0 V (față de electrodul standard de hidrogen SHE) și anume: Ir, Pt și Au, având U_{dis} de 1,16, 1,18 și 1,5 V (SHE) [US 20170179393 (A)]. În aplicația reală a FC, problema este mai complexă, de exemplu, în medii acide severe ($pH = 0$), potențialul de dizolvare al Pt permite un potențial de electrod de 0,65 V, care este mult mai mic decât potențialul de funcționare eficientă a pilei de combustibil. Au este cea mai bună opțiune datorită stabilității sale electrochimice în condiții de reacție acide specifice FC, fiind de departe cel mai stabil metal împotriva dizolvării. Recent s-au făcut câteva încercări în legătură cu încorporarea atomilor de Au în grafenă [CN 101973518 (B), CN 102211207 (A)].

De asemenea, s-a arătat că Au este puternic legat de di-vacante (DV) și barierele sale de difuzie sunt mari (~ 4 eV), ceea ce asigură stabilitatea sistemului catalitic. În plus, atomii Au dopanți sunt încorporați într-unul dintre cele mai stabile locuri din punct de vedere termodinamic, create în grafenă: 5-8-5 DV, astfel încât grafena dopată cu aur poate fi considerată pe deplin un electrocatalizator foarte stabil și activ pentru ORR [Sergey Stolbov, Marisol Alcántara Ortigoza, *Gold-doped graphene: A highly stable and active electrocatalysts for the oxygen reduction reaction*, *The Journal of Chemical Physics* **142**, 154703 (2015)].

Mai precis, nanoparticulele de aur au primit o atenție remarcabilă ca electrocatalizatori datorită proprietăților lor fizice și chimice, cum ar fi stabilitatea pe termen lung și conductivitatea superioară. Cu toate acestea, există încă o provocare semnificativă în controlul uniformității decorării nanoparticulelor metalice pe suprafața grafenei și în special a rezistenței legăturii dintre structura organică și anorganică.

Dintre metodele de preparare utilizate, modul cel mai convenabil de a prepara nanocatalizatori grafenicidecorați cu Au se bazează pe reducerea soluției de precursori metalici, în prezența grafenei. Prezența funcționalităților oxigenului pe suprafața grafenei furnizează situri reactive pentru nucleație iar nanoparticulele de Au nu se pot lega la suprafețele grafenice total reduse. S-au preparat nanoparticule de Au depuse pe suprafața grafenei folosind o metodă chimică în mediu apos [Gil Goncalves, Paula A. A. P. Marques, Carlos M. Granadeiro, Helena I. S. Nogueira, M. K. Singh, J. Grácio, *Surface Modification of Graphene Nanosheets with Gold Nanoparticles: The Role of Oxygen Moieties at Graphene Surface on Gold Nucleation and Growth*, *Chem. Mater.*, **2009**, **21** (20), pp. 4796-4802]. Dezavantajul acestei metode îl constituie faptul că filmele de Au-grafenă formate sunt supuse tratamentului de hidrazină (hidrura de azot - lichid inflamabil foarte toxic și instabil) pentru a elimina funcțiile de oxigenare, a reduce defectele și a restabili rețeaua sp^2 .

De asemenea s-a preparat hidrogel de Au/grafenă, prin autoasamblarea foițelor grafenice de Au în condiții hidrotermale cu oxid de grafenă ca precursor grafenic, acid chlorauric ca precursor de Au și trietilentetramina ca reducător. Compozitul obținut a fost utilizat

1 cu succes într-un alt domeniu de aplicație și anume pentru reacția de reducere a nitro-
fenolilor și aminofenolilor [Jing Li, Chun-yan Liu, Yun Liu, *Au/graphene hydrogel:
3 synthesis, characterization and its use for catalytic reduction of 4-nitrophenol, Journal
of Materials Chemistry, issue 17, 2012*].

5 De asemenea, toate compozitele grafenice decorate cu Au prezentate în literatura
de brevete nu prezintă sau nu precizează domeniul de utilizare ori nu au fost testate în
7 domeniul electrocatalizatori ORR pentru PEMFC.

9 În prezența polielectrolitului surfactant cu sarcina pozitivă, funcționalizarea grafenelor
a putut fi realizată mai simplu, aceasta fiind favorabilă generării de nanoparticule de Au
uniform dispersate pe suprafața grafenică. S-au sintetizat grafene compozite cu Au, prin
11 utilizarea poli-(Nvinil-2-pirolidona) ca stabilizator și reducător. Dezavantajul acestei metode
în constituie prezența solvenților foarte toxici.

13 O altă metodă de a sintetiza compozitele grafena decorată cu nanoparticule de Au
constă în simpla amestecare a oxidului de grafenă (sau oxid de grafenă redus) și a nano-
15 particulelor presintetizate de Au cu suprafața funcționalizată de 2-mercaptopiridina. Deza-
vantajul acestei metode constă în dificultăți în controlul uniformității decorării nanoparticulelor
17 metalice de pe suprafața grafenei.

19 Dezavantajul pe care îl prezintă nanoparticulele de Au produse prin metodele clasice
de reducere chimică, prezintă de obicei o dispersie slabă pe grafenă, iar nanocompozitul
hidrofobic format are tendința de a agrega prin interacțiuni van der Waals. În acest context,
21 utilizarea unui polielectrolit cu sarcina pozitivă pentru funcționalizarea grafenei, a acidului
cloroauric ca precursor de Au, urmată de co-reducerea cu un agent reducător (în acest caz,
23 borohidru de sodiu), înlătură dezavantajele și limitările descrise mai sus.

25 Problema tehnică pe care o rezolvă invenția, așa cum rezultă din descriere, constă
în obținerea unui material compozit pe bază de grafene dopate cu nanoparticule metalice de
aur, care să prezinte caracteristici fizico-chimice, morfologie și o structură care să faciliteze
27 reacția de reducere a oxigenului într-o pilă de combustibil tip PEM (Proton Exchange
Membrane).

29 Nanocompozitele Au/grafenă conform invenției, s-au sintetizat utilizând o cale simplă
care implică oxidarea chimică, exfolierea oxidului de grafenă, precum și funcționalizarea cu
31 un polimer compatibil, conform schemei prezentată în fig. 1. Clorura de poli-dialildimetil-
amoniu (PDDA) a fost utilizată ca polielectrolit cationic, deoarece prezintă capacitatea de
33 adsorbție pe suprafața de grafenă prin intermediul legăturilor π - π și interacțiunilor elec-
trostactice, acționând ca stabilizator în sinteza de Au/grafenă. Absorbția fizică a PDDA,
35 polielectrolit încărcat pozitiv ce are capacitatea de a reține electroni de pe stratul grafenic,
generează o încărcare pozitivă asupra atomilor de carbon din toată structura grafenei prin
37 transfer de sarcină intermoleculară. Un factor cheie care garantează fezabilitatea acestui
sistem este faptul că grafena funcționalizată rezultată are o activitate electrocatalitică
39 îmbunătățită față de ORR. În plus, straturile de grafenă încărcate ionic pot fi ușor
funcționalizate de polimerul PDDA încărcat pozitiv prin interacțiune electrostatică, ceea ce
41 crește stabilitatea grafenei în soluție. Pe de altă parte, ionii de AuCl_4^- pot fi atrași de supra-
fața încărcată pozitiv a grafenei funcționalizate cu PDDA și apoi pot fi reduși *in situ* la adău-
43 garea de agenți reducători, la particule de Au confinate în porii grafenei. Folosind această
strategie, este efectuată o depunere controlabilă a nanoparticulelor Au pe grafenă. Încăr-
45 carea cu Au poate fi ajustată prin optimizarea raportului dintre PDDA și precursorul de aur.

47 Conform invenției, procedeul de preparare a grafenelor dopate cu nanoparticule
metalice de Au este o cale de sinteză cu costuri reduse, ce se bazează pe co-reducerea
in situ a precursorului grafenic și precursorului de Au (acid cloroauric) în prezența PDDA.

RO 133529 B1

Se prezintă în continuare un exemplu de realizare a invenției, ilustrată în fig. 1. Pentru obținerea materialului nanocompozit pe bază de grafene dopate cu nanoparticule metalice de aur prin procedeul conform invenției, se folosesc următoarele materii prime: grafit pulbere tip PMM7 (KOH-I-NOR); $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, $\geq 49,0\%$ (Alfa Aesar), PDDA 20%, masa moleculară medie 200000-350000 Da (Alfa Aesar), P_2O_5 , 98% - p.a., H_2O_2 30%, HCl 30% p.a., Na_2CO_3 , 99,5% anhidru, KMnO_4 99,0% minimum (Sigma Aldrich), H_2SO_4 , minimum 99,8% p.a., NaBH_4 minimum 98 wt% (Alfa Aesar). Pentru prepararea grafenelor decorate cu nanoparticule de Au conform invenției, materiile prime se dozează și se prelucrează astfel:

Etapa I: Preoxidare/Intercalare/Oxidare

Instalația de preoxidare este compusă din balon de sinteză cu fund rotund și 4 găuri, prevăzut cu agitare mecanică, termometru, refrigerent de reflux închis cu vas de uscare cu silicagel. În balonul de sinteză se introduc 70 ml H_2SO_4 , 8 g $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$, 8 g P_2O_5 la temperatura camerei și se agită amestecul timp de 10 min după care se introduc 10 g grafit solid și se continuă agitarea. Amestecul de reacție se încălzește la 80°C și se menține sub agitare, timp de 3 h. Masa de reacție răcită la temperatura camerei este dispersată sub agitare mecanică (500 rpm), în 1 L apă distilată, apoi se decantează. Se separă supernatantul, iar produsul preoxidat separat sub forma unui gel se dispersează în apă distilată și se repetă operația de decantare de câteva ori. După ultima decantare, pH-ul supernatantului a fost de 5,2. Gelul obținut după ultima decantare e supus uscării propriu-zise prin liofilizare cu ajutorul echipamentului VaCo-II Zirbus, pentru a evita compactizarea straturilor grafitice funcționalizate cu grupări oxigenate intercalate.

Solidul obținut este introdus în instalația de oxidare, compusă din balon de sinteză cu 4 găuri, cu fund rotund, prevăzut cu agitare mecanică, refrigerent cu reflux răcit cu aer prevăzut cu trapă de uscare cu silicagel, așezat în baie de gheață. În balonul de sinteză se introduc 150 ml H_2SO_4 răcit sub agitare pe baie de gheață, apoi 20 g P_2O_5 , și grafit preoxidat. După 1 h de agitare pe baie de gheață se introduc 25 g KMnO_4 , evitând depășirea temperaturii de 10°C (risc de explozie). Timpul de reacție este 1 h. Balonul de reacție se transferă pe baie de încălzire și amestecul de reacție se aduce lent la 45°C și se menține timp de 24 h sub agitare. Amestecul de reacție răcit se dispersează sub agitare mecanică în apă distilată, apoi peste amestecul rezultat se dozează 30 ml apă oxigenată. Masa de reacție este separată prin decantare urmată de centrifugare timp de 15 min la 15000 rpm. Solidul obținut este redispersat prin agitare mecanică (450 rpm) la temperatura camerei în 200 ml soluție HCl 500 rpm. Masa solidă se separă din nou prin centrifugare 15 min la 16000 rpm. Oxidul de grafit obținut este spălat și separat prin ultracentrifugare de câteva ori, apoi redispersat în apă distilată.

Etapa II - Exfoliere și funcționalizare

Amestecul dispersat este ultrasonat timp de 1 h la 110 W și 40 kHz și $25-30^\circ\text{C}$, în baie ultrasonică. Peste amestec se dozează, sub agitare continuă, 40 ml soluție NaCl. În continuare se dozează clorura de polidimetil-dialil amoniu 20% (PDDA) soluție apoasă. Se omogenizează amestecul de reacție timp de 2 h, prin agitare mecanică în trepte de la 300 la 500 rpm, pentru a minimiza fenomenul de floclare. Se transvazează dispersia în flacoane Erlenmayer și se continuă ultrasonarea în condițiile menționate timp de încă 2 h. Se separă solidul prin ultracentrifugare la 16000 rpm. Produsul separat este spălat iar gelul separat este redispersat în apă distilată, apoi ultrasonat 15 min. Peste dispersia obținută se adaugă 2,3 g $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ sub formă de soluție (din cauza higroscopicității produsului solid). Datorită proprietății de donor de electroni a foițelor de oxid de grafenă obținută în această etapă, ionii pozitivi de Au^{+3} sunt adsorbiți și ancorați pe suprafața acesteia. Grupările funcționale prezentate pe suprafața oxidului de grafenă (cum ar fi -OH, -COOH, epoxizi) interacționează cu precursorii de metal și facilitează astfel, nucleația și formarea de nanoparticule metalice.

RO 133529 B1

1 Amestecul de reacție se agită mecanic, la 400-450 rpm, timp de 24 h la temperatura
camerei.

3 *Etapa III - Etapa de co-reducere*

5 Pentru co-reducerea *in situ* a oxidului de grafenă și acidului cloroauric, într-un balon
cu fund rotund cu 4 găuri termostatat în baie de glicerină prevăzut cu agitare mecanică,
7 termometru, refrigerent de reflux și pâlnie de dozare se introduce masa de reacție obținută
în etapa precedentă. O soluție proaspătă de NaBH_4 (40 g în 250 ml apă distilată) se dozează
9 lent la 80°C și 750 rpm. Se reglează pH-ul soluției la 10 cu Na_2CO_3 5% (reacție ușor exo-
termă) și masa de reacție se perfectează 4 h la 85°C . Produsul de reacție se răcește și se
11 separă prin decantare și ultracentrifugare la 16000 rpm în repetate rânduri până când pH-ul
supernatantului este sub 8. Solidul separat se spală pe filtru până la liber de SO_4^{2-} și Cl^- . Se
13 obține o turtă cu umiditate de 87%, care se supune procesului de uscare prin liofilizare.
Materialul obținut conține 59,5% C, 16,2% Au, 12,6% O, 0,1% Cl, 12,1% N, valori deter-
minate prin analiza EDS.

15 Avantajele pe care le oferă grafena decorată cu Au preparată prin procedeul care
face obiectul acestei invenții sunt: procedeul de obținere econom și simplu, fără dificultăți
17 tehnologice privind operațiile de sinteză și exploatare a instalației; tehnologie necostisitoare;
materii prime ieftine și ușor de procurat; obținerea unor dimensiuni de pori controlabilă prin
19 optimizarea raportului dintre PDDA/acid cloroauric; dispersie omogenă a Au în structura
grafenei; chimie complexă a suprafeței, cu multiple posibilități de funcționalizare datorită
21 prezenței grupărilor oxigenate; suprafața specifică a oxidului de grafenă redus și nedecorat
cu particule metalice cuprinsă între $350\text{-}790\text{ m}^2/\text{g}$; suprafața specifică a oxidului de grafenă
23 redus și decorat cu particule metalice de Au cuprinsă între $80\text{-}450\text{ m}^2/\text{g}$; suprafața oxidului
de grafenă redus, obținut conform invenției, posedă situri de fixare particule metalice de Au,
25 datorită morfologiei și centri activi catalitic datorită stabilității nanoparticulelor metalice prin
efecte geometrice (confinare în pori) și chimice (ca urmare a interacțiunilor electrostatice).

27 Materialul preparat a fost utilizat ca electrocatalizator ORR în PEMFC.

În documentarea efectuată până la data depunerii cererii de brevet, nu a fost identi-
29 ficat nici un alt brevet referitor la prepararea unui compozit pe bază de grafene decorate cu
nanoparticule metalice de aur preparat prin tehnologia necostisitoare în 3 etape conform
31 prezentei invenții și folosite în scopuri identice (catod PEMFC).

Pentru studierea comportamentului electrochimic al grafenelor decorate cu Au față
33 de reacția de reducere a oxigenului ORR, s-au preparat electrozi modificați chimic. Corpul
electrozilor preparați este format dintr-un amestec de pudră de carbon și ulei de parafină în
35 diferite proporții. Pasta obținută s-a utilizat pentru prepararea a 3 electrozi diferența dintre
aceștia constând în modificatorii introduși în vârful fiecăruia: electrod pastă de cărbune
37 (CPE-Carbon Paste Electrode), electrod cu oxid de grafenă (CPE-GO), electrod cu oxid de
grafenă redus și decorat particule Au (CPE-Au-GO) și au fost înregistrate curbele de
39 voltametrie ciclică comparativ cu electrodul CPE.

Electrozii modificați au fost testați folosind o soluție de $\text{K}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ 1M, în apă
41 distilată, utilizându-se ca electrolit indiferent KCl astfel încât concentrația acestuia să fie de
5 M. Rezultatele obținute sunt prezentate în tabelul 1.

43

RO 133529 B1

Datele obținute din măsurătorile de voltametrie ciclică

Tabelul 1

Nr. crt.	Tipul electrodului	i_{anod} (HA)	i_{catod} (HA)	i_{pcatod} (HA)	Potențial inițial (V)	Potențial final (V)	ECSA (mV)
1	CPE	3,21	- 3,32	- 5,12	0,14	0,43	-
2	CPE-GO	5,76	- 6,22	- 7,42	0,193	0,38	2,41
3	CPE-Au-GO	12,62	- 13,01	- 24,61	0,11	0,38	13,5

Electrozii modificați chimic sunt sensibili față de electrodul CPE. Electrozii modificați au prezentat activitate electrocatalitică față de oxidarea anodică și reducerea catodică. Au fost comparate următoarele caracteristici electrochimice: curent anodic, curent catodic, vârf de curent catodic, potențial inițial, potențial final, suprafața electrochimică. S-a constatat, ca în cazul electrodului modificat cu grafene decorate cu Au, curentul este de 3,94 ori mai mare decât cel obținut la electrodul CPE nemodificat. Ceea ce îl face potrivit pentru a fi utilizat ca electrocatalizator. De asemenea, potențialul de vârf anodic și catodic este deplasat cu aproximativ 100 mV pentru grafenele decorate cu Au, comparativ cu potențialul de la CPE.

RO 133529 B1

Revendicări

1

3

1. Procedeu de obținere a unui nanocompozit pe bază de grafene dopate cu aur, **caracterizat prin aceea că**, cuprinde 3 etape:

5

- intercalare a grupărilor oxigenate în planele grafitului, în prezența H_2SO_4 , $KMnO_4$ și H_2O_2 ;

7

- exfolierea prin ultrasonare a oxidului de grafit la oxid de grafenă, urmată funcționarea cu clorura de polidimetil-dialil amoniu;

9

- co-reducerea *in situ* a oxidului de grafenă și a acidului cloroauric, cu formarea unui compozit de grafenă dopat cu Au.

11

2. Material nanocompozit obținut prin procedeul definit în revendicarea 1, **caracterizat prin aceea că**, prezintă o suprafață specifică SBET cuprinsă între 80...450 m^2/g .

13

3. Material nanocompozit obținut prin procedeul definit în revendicarea 1, **caracterizat prin aceea că**, poate fi utilizat ca electrocatalizator pentru reacția de reducere a

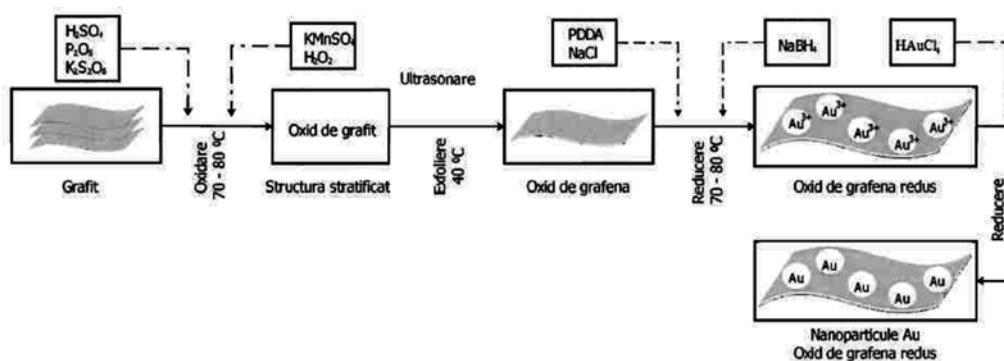
15

oxigenului.

(51) Int.Cl.

H01G 11/32 (2013.01);

C01B 32/182 (2017.01)



Editare și tehnoredactare computerizată - OSIM
 Tipărit la Oficiul de Stat pentru Invenții și Mărci
 sub comanda nr. 27/2022