

Zredukowane tlenki grafenu wzbogacone w azot jako materiał elektrodowy sensorów elektrochemicznych

Autor: mgr. inż. Piotr Wiench

Promotor: prof. Dr hab. inż. Grażyna Gryglewicz

STRESZCZENIE PRACY DOKTORSKIEJ

Opracowanie nowych metod oznaczania neuroprzekaźników katecholaminowych są bardzo ważne ze względu na potrzebę usprawnienia diagnostyki i terapii określonych chorób związanych z nieprawidłowym poziomem obecności tych związków w organizmie ludzkim. Obiecującym kierunkiem jest opracowanie sensorów elektrochemicznych wykorzystujących jako materiały elektrodowe szeroką gamę nowych nanomateriałów węglowych, na przykład nanorurki węglowe i materiały grafenowe.

Celem tej pracy była synteza zredukowanych tlenków grafenu domieszkowanych azotem i kompozytów z nanocząstkami złota przeznaczonych do zastosowania w sensorach elektrochemicznych, do analizy dopaminy i epinefryny. Do charakteryzacji otrzymanych nanomateriałów grafenowych stosowano rentgenowską spektroskopię fotoelektronów (XPS), spektroskopię w podczerwieni (FTIR) i skaningową mikroskopię elektronową (FESEM, SEM-EDX). Azotowane materiały grafenowe (N-rGO) syntezowano w procesie hydrotermalnym stosując tlenek grafenu i związki zawierające w swojej strukturze azot, w tym amitrol, mocznik i jolidan. W zależności od rodzaju prekursora azotu otrzymano N-rGO z dominującym udziałem połączeń pirydynowych, pirolowych lub grup amidowych i aminowych. Opracowano także warunki syntezy N-rGO o zbliżonej dystrybucji połączeń azotowych, lecz o różnej zawartości tlenu stosując amitrol jako prekursor azotu.

Syntezowane N-rGO wykorzystano do modyfikacji elektrody z węgla szklanego (GCE) do detekcji dopaminy (DA) i epinefryny (EP). W badaniach elektrochemicznych stosowano cykliczną woltamperometrię (CV), różnicową woltamperometrię pulsową (DPV) i spektroskopię impedancyjną (EIS). Określono rolę tlenu i poszczególnych grup azotowych w procesie detekcji DA i EP oraz wyznaczono optymalny skład materiału elektrodowego. Wykazano, że najlepsze parametry elektrochemicznej detekcji, w tym limit detekcji 335 nM i czułość 3,51 $\mu\text{A}/\mu\text{M}$ dla DA oraz 0,62 μA i 1,45 $\mu\text{A}/\mu\text{M}$ dla EP można uzyskać modyfikując elektrodę GCE materiałem grafenowym o pirolowym charakterze połączeń azotowych i zawartości tlenu w zakresie 11-12 % at. Badania elektrochemiczne sensorów z elektrodą GCE modyfikowaną N-rGO o zbliżonej dystrybucji połączeń azotowych, ale o różnej zawartości tlenu wykazały, że stosując N-rGO o najniższej zawartości tlenu uzyskuje się najlepsze parametry pracy sensora. Możliwa była detekcja DA w liniowym zakresie stężeń od 0,5 do 150 μM z limitem detekcji 410 nM. Dalszą poprawę pracy sensora osiągnięto nanosząc na powierzchnię N-rGO nanocząstki złota metodą elektrochemiczną z roztworu HAuCl_4 stosując metodę cyklicznej woltamperometrii. Modyfikując elektrodę GCE kompozytem N-rGO/Au otrzymano bardzo niskie wartości LD równe 173 nM dla DA i 0,53 μM dla EP. Obecność azotu pirolowego umożliwiła zachowanie wysokiej czułości detekcji, 2,66 i 0,81 $\mu\text{A}/\mu\text{M}$ odpowiednio dla DA i EP.

Zaprezentowane w pracy doktorskiej wyniki otwierają drogę do badań mających na celu opracowanie wysoko efektywnego materiału elektrodowego do elektrochemicznych sensorów dopaminy i epinefryny, wykorzystując N-rGO i nanocząstki złota, i pozwalają głębiej zrozumieć rolę poszczególnych grup azotowych w detekcji DA i EP, a co za tym idzie łatwiej zaprojektować urządzenie analityczne o pożądanym parametrach.