



HAL
open science

Radiolyse de l'eau confinée dans des nanotubes d'aluminosilicate : mise en évidence des effets de séparation de charges

M.-C Pignié, V Shcherbakov, Thibault Charpentier, C Carteret, S Denisov, M Mostafavi, A Thill, Sophie Le Caër

► To cite this version:

M.-C Pignié, V Shcherbakov, Thibault Charpentier, C Carteret, S Denisov, et al.. Radiolyse de l'eau confinée dans des nanotubes d'aluminosilicate : mise en évidence des effets de séparation de charges. 19ème colloque annuel du Groupe Français des Argiles (GFA), May 2022, Paris, France. cea-03664836

HAL Id: cea-03664836

<https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-03664836>

Submitted on 11 May 2022

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Radiolyse de l'eau confinée dans des nanotubes d'aluminosilicate : mise en évidence des effets de séparation de charges

M.-C. Pignié¹, V. Shcherbakov², Th. Charpentier¹, C. Carteret³, S. Denisov², M. Mostafavi²,
A. Thill¹ & S. Le Caër¹

¹ NIMBE, UMR 3685 CEA, CNRS, Université Paris-Saclay, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

² Institut de Chimie Physique, CNRS–Université Paris Saclay, Bâtiment 349, 91405 Orsay, France

³ Université de Lorraine, CNRS, LCPME, 54000 Nancy, France

Courriel : sophie.le-caer@cea.fr

Les nanotubes d'imogolite sont des co-photocatalyseurs potentiellement prometteurs [1]. En effet, ces argiles sont décrites comme présentant une polarisation de paroi leur permettant de séparer les porteurs de charges photo-générés. Afin d'étudier ces phénomènes expérimentalement et en détails, nous avons utilisé la radiolyse (i.e. l'interaction entre les rayonnements ionisants et la matière), qui est un outil pour générer des charges (électrons et trous) et étudier leur devenir.

Cette étude a été menée en fonction de la teneur en eau de ces nanotubes inorganiques. Deux types de nanotubes d'aluminosilicate ont été étudiés : l'un est hydrophile sur ses surfaces externe et interne (IMO-OH), alors que l'autre présente une cavité interne hydrophobe due aux liaisons Si-CH₃ (IMO-CH₃), la surface externe restant hydrophile. Des expériences de radiolyse pulsée picoseconde ont démontré que les électrons sont efficacement transférés à l'extérieur des nanotubes. Des mesures de production de gaz ont mis en évidence que, pour les échantillons d'imogolite contenant très peu de molécules d'eau sur les surfaces externes (environ 1% de la masse totale), des électrons quasi-libres sont formés. Ils s'attachent à une molécule d'eau, générant un anion radicalaire de l'eau, qui conduit *in fine* à la formation de dihydrogène. Lorsque davantage de molécules d'eau externes sont présentes, des électrons solvatés, précurseurs du dihydrogène, se forment.

En revanche, les trous se déplacent vers la surface interne des tubes. Ils conduisent principalement à la formation de dihydrogène et de méthane dans IMO-CH₃ irradié.

L'attachement de l'électron quasi-libre à l'eau est un processus très efficace qui rend compte de la production élevée de dihydrogène pour de faibles valeurs d'humidité relative. Lorsque la teneur en eau augmente, la solvation des électrons est prépondérante par rapport à l'attachement aux molécules d'eau. La solvation des électrons conduit donc à la production de dihydrogène, quoique dans une moindre mesure que lorsque les précurseurs sont les électrons quasi-libres.

Nos expériences démontrent donc la séparation de charge spontanée induite par la courbure dans ces nanotubes inorganiques [2], ce qui en fait des co-photocatalyseurs potentiels très intéressants.

Références :

[1] Poli E., Elliott J.D., Ratcliff L.E., Andrinopoulos L., Dziedzic J., Hine N.D.M., Mostofi A.A., Skylaris C.-K., Haynes P.D. & Teobaldi G. (2016) The potential of imogolite nanotubes as (co-)photocatalysts: a linear-scaling density functional theory study. *J. Phys.: Condens. Matter*, **28**, 074003.

[2] Pignié M.-C., Shcherbakov V., Charpentier T., Moskura M., Carteret C., Denisov S., Mostafavi M., Thill A. & Le Caër S. (2021), Confined water radiolysis in aluminosilicate nanotubes: the importance of charge separation effects. *Nanoscale*, **13**, 3092-3105.