

VU Research Portal

Photophysics of solar fuel materials

Ravensbergen, J.

2015

document version

Publisher's PDF, also known as Version of record

[Link to publication in VU Research Portal](#)

citation for published version (APA)

Ravensbergen, J. (2015). *Photophysics of solar fuel materials*.

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal ?

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

E-mail address:

vuresearchportal.ub@vu.nl

Samenvatting

Fotofysica van zonnebrandstof materialen

De energie van zonlicht kan worden gebruikt om een chemische reactie die thermodynamisch ongunstig is toch te laten plaatsvinden. Op deze wijze geproduceerde hoogenergetische moleculen worden 'solar fuel' of 'zonnebrandstof' genoemd. Om het rendement van de omzetting van zonne-energie naar brandstof te verbeteren, is het van belang om de fotofysische routes te kennen die leiden tot—of concurreren met—de productie van brandstoffen. In dit proefschrift wordt tijdopgeloste absorptiespectroscopie (pump-probe) gebruikt om de fotofysica van verschillende materialen te bestuderen in de context van zonnebrandstof onderzoek.

Hoofdstuk 1 is een inleidend hoofdstuk over zonnebrandstof onderzoek en tijdopgeloste absorptiespectroscopie. Hoofdstuk 2 presenteert de studie van een caroteen-porfyrine en een caroteen-fullereen molecuul. Na excitatie van het caroteen in deze moleculen vinden elektronoverdracht, excitatie-energieoverdracht en ladingsrecombinatie processen plaats. Verrassend is dat het excitatie-energieoverdracht proces afwezig is in de caroteen-porfyrine.

Het caroteen-ftalocyanine molecuul in Hoofdstuk 3 geeft een complex tijdopgelost absorptiesignaal, dat wordt verklaard door de aanwezigheid van drie subpopulaties in het monster. De subpopulaties kunnen het gevolg zijn van rotatie van de caroteen ten opzichte van het ftalocyanine. De eerste subpopulatie toont de spectrale kenmerken van excitonische koppeling: een spectrum met zowel caroteen als ftalocyanine signalen is aanwezig direct na excitatie. De tweede subpopulatie toont de indicators van excitatie-energieoverdracht van ftalocyanine naar caroteen en de derde die van onafhankelijk ftalocyanine verval.

Hoofdstuk 4 presenteert de fotofysica van een fenol-pyrrolidino[60]fullereen molecuul. Bij excitatie van het fullereen wordt een proton-gekoppelde elektron overdracht (PCET) proces waargenomen. Uitwisseling van het proton met deuterium leidt tot een drievoudige vermindering van de PCET snelheid. Dit

kinetisch isotoop effect laat zien dat het proton en elektron in een gecoördineerde manier worden overgedragen.

In Hoofdstuk 5 wordt de spectroscopische analyse van een moleculaire triade gerapporteerd. Een porfyriene elektron donor is covalent verbonden aan zowel een cyanoporfyriene acceptor als een benzimidazole-phenol model voor het Tyr_Z-D₁His190 paar uit fotosysteem II. Er vindt fotogeïnduceerde elektron overdracht plaats van porfyriene naar de cyanoporfyriene, maar in tegenstelling tot een studie van een vergelijkbaar molecuul, werd de formatie van een lang levende ladingsgescheiden staat niet waargenomen.

Hoofdstuk 6 bevat een studie van de halfgeleider bismutvanadaat (BiVO₄) besproken. Deze studie belicht de processen die elektronen en gaten ondergaan na excitatie van de halfgeleider. De fotofysica omvat vangst van elektronen en gaten en recombinatie met een vangst-gelimiteerde snelheid.

Hoofdstuk 7 beschrijft de implementatie van een tweede laser in de bestaande femtoseconde tot nanoseconde tijdopgeloste absorptiespectroscopie opstelling. In de resulterende dubbel-laser opstelling is het bereik van de tijdschalen uitgebreid tot de milliseconde tijdschaal, met behoud van de femtoseconde resolutie.