

# 合肥研究院等在氢的表面扩散的核量子效应研究方面取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/5440.html>

**本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！**

合肥研究院等在氢的表面扩散的核量子效应研究方面取得进展。近期，中国科学院合肥物质科学研究院固体物理研究所研究员杨勇和日本东北大学教授Kawazoe合作，基于第一性原理计算对氢原子在 $\beta$ -PtO<sub>2</sub>(001)面的吸附和扩散以及核量子效应作了系统的研究。相关论文被编辑以ASAP (As Soon As Publishable) Article的形式在线发表于美国化学会期刊The Journal of Physical Chemistry C (J. Phys. Chem. C, DOI: 10.1021/acs.jpcc.9b04107)上。

氢在固体材料表面的吸附和扩散，在一些基本的物理和化学过程中扮演着重要的角色，例如，氢氧燃料电池的电极反应、碳氢化合物的合成与分解、储氢过程以及金属与合金的氢脆过程。在过去的几十年里，人们对氢在金属尤其是过渡金属表面的吸附和扩散过程作了大量的研究。与之相对的是，人们对氢在过渡金属氧化物表面的吸附和扩散过程知之甚少，尽管后者在催化和能源转化材料等领域有着重要的应用。以质子膜交换燃料电池 (proton-exchange membrane fuel cell) 为例，氢离子在到达阴极之后，先和经由导线到达的电子复合成为氢原子，然后和阴极表面吸附的O<sub>2</sub>反应生成水。实验上发现，在使用一段时间之后，电池的铂电极表面会覆盖上一层主要成分为 $\beta$ -PtO<sub>2</sub>的氧化物。一个自然而然的问题是，这层氧化物的形成，对氢在电极表面的输运过程影响如何？另一方面，相对于其他元素例如氧而言，氢的质量很小；因此，原子核的量子运动即核量子效应 (Nuclear Quantum Effects) 会比较明显。那么，核量子效应在扩散过程中会扮演什么角色？

为此，研究人员基于第一性原理计算对氢原子在 $\beta$ -PtO<sub>2</sub>(001)面的吸附和扩散以及核量子效应作了系统的研究。计算表明，当氢原子沿着某些特定的路径扩散的时候 (图1)，所需要克服的势垒和在Pt电极表面相比相差无几。因此可以预计，即便是形成氧化物之后，氢在这个表面的输运也几乎不受影响。

接下来，基于量子力学的Wentzel – Kramers – Brillouin (WKB) 近似以及统计力学关于粒子动能分布的最新成果，杨勇给出了在特定温度下单粒子穿越势垒的经典和量子概率的解析表达式。与研究核量子效应常用的理论工具——路径积分分子动力学 (path integral molecular dynamics) 相比，这一新方法的优势在于：在保证合理精度的前提下，可以用相对小得多的计算量对表面及体态等大尺度原子分子体系中的核量子效应做研究。把这一方法运用到氢原子在 $\beta$ -PtO<sub>2</sub>(001)面的扩散过程，可以计算出氢原子穿越给定势垒的经典概率(PC)和量子概率(PQ)。如图2所示，在室温 (~300 K) 条件下，量子概率和经典概率的幅度不相上下，不可忽略；而在低温下，量子概率远大于经典概率，占据着绝对主导地位。

这项研究获得国家自然科学基金的资助。

---

图1. (a)氢原子在  $\beta$ -PtO<sub>2</sub>(001)面扩散示意图;(b)从位型A扩散至位型B的最优能量路径;(c)从位型A扩散至位型B对应的一些中间吸附态。

图2. 氢原子沿着最优能量路径从位型A扩散至位型B的过程中，经典穿越概率(PC)和量子穿越概率(PQ)随温度的变化。

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](https://www.iikx.com)转发