物理所在氧离子输运动力学的原位电镜研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/8478.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！

离子调控是产生新物态和新物性的一种重要手段。离子输运伴随的结构相变微观机制是决定材料性质和器件功能的关键。在原子尺度下对离子传输动态行为进行原位实时观测，揭示材料新性质的原子机制，对材料设计和器件应用具有重要意义。

中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家研究中心表面物理国家重点实验室研究员白雪冬课题组在过去十多年里，利用自行研发的原位电镜技术，观测表征功能氧化物中氧离子及其传输动力学
过程，在
离子调控结构相变
研究方面取得了系列成果。例如，他
们针对二氧化铈（CeO_2
）这一多功能氧化物材料体系，通过原位外场调控方法，发现外加电场可以大大降低二氧化铈薄膜中氧原子脱离晶格的势垒(*JACS,*
132,4197（2010），并对氧离子调控结构相变动力学行为做了系统表征（*APL,*
107,211902（2015）；*ChemCatChem* 8,3326（2016）；*Sci China Chem* 62, 1704 (2019))。最近，基于原位技术以及像差校正电镜分析技术的发展，该课题组副研究员王立芬与中国科学院大学副教授张余洋等人合作在CeO_2
中氧扩散的原子机制研究方面取得新进展。研究团队利用像差矫正透射电子显微镜实时原子成像技术和分子动力学模拟方法，揭示了CeO在激活条件下氧原子各向异性扩散的原子机制。该工作以*Visualizing Anisotropic Oxygen Diffusion in Ceria under Activated*
Conditions 为题发表在《物理评论快报》（*Physical Review*
Letters）上。表面室SF1组研究生朱亮和纳米室N04组研究生金鑫是该文章的共同第一作者。

该研究利用像差校正电镜（Aberration-corrected
TEM）对CeO_2
纳米颗粒进行表征，实现了Ce原子和O原子直接原子分辨成像，同时发现透射电镜高能电子束传递给氧化铈中氧
原子足够多的能量导致氧原子析
出并伴随氧化铈产生萤石相CeO_2和铁锰矿相Ce_2O_3
的相转变(图1)。利用电子束进行动态观察表征，同时作为诱导氧离子迁移的手段，捕获了反应中的氧原子和它的实时扩散路径（图2），原位实时观察到氧化铈中氧原子扩散的优先路径，通过实验观测和分子动力学模拟，发现了萤石结构氧化铈中氧原子以<001>方向作为优先传输通道

。结合第一性原理计算，揭示了其物理原因在于氧原子扩散过程中伴随的电子重新分布使局域库仑作用力发生改变，导致晶格扰动，氧原子扩散路径选择扰动能量最低的方向（图3）。这种氧原子扩散过程中伴随的配位价态的变化也得到了原位电子能量损失谱分析结果的佐证（图4）。本研究揭示的萤石结构二氧化铈中氧原子各向异性传输机制对于其各向异性相关的性质和功能调控具有指导作用。

上述工作得到中科院、科技部、国家自然科学基金委、北京自然科学基金委和中科院青促会的资助。

文章链接

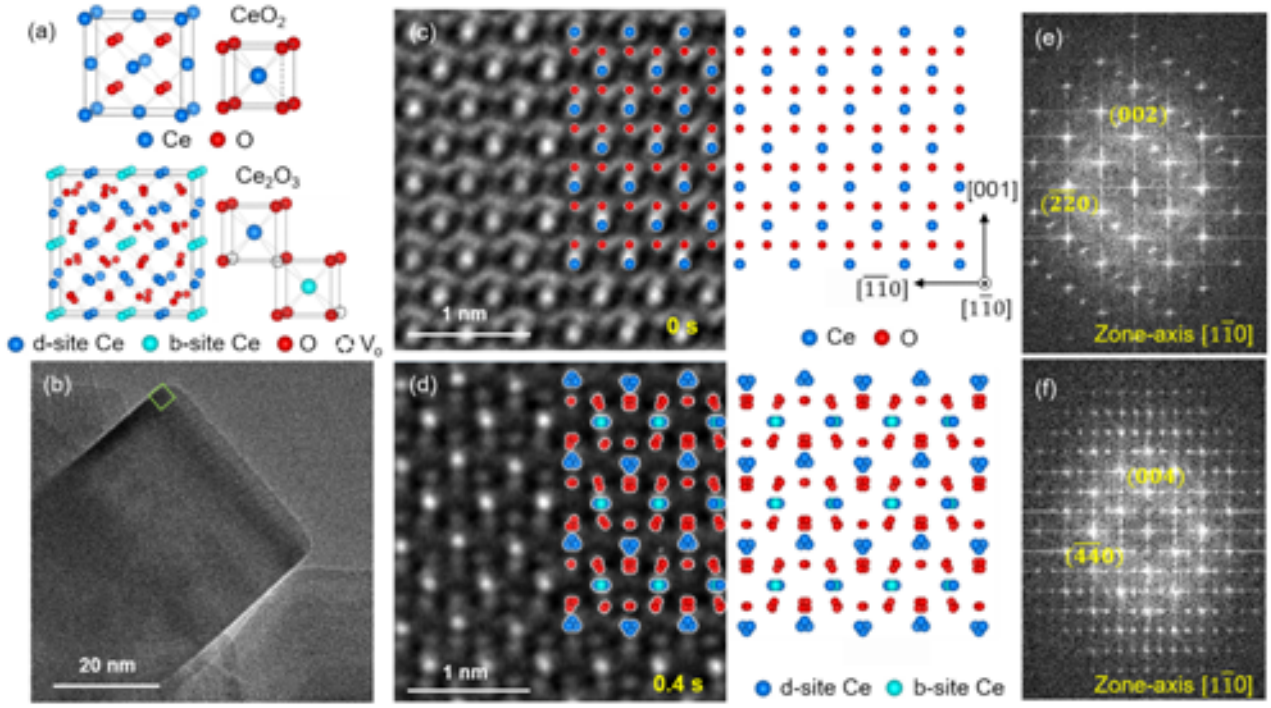


图1：CeO_2结构演变的原子分辨TEM成像。

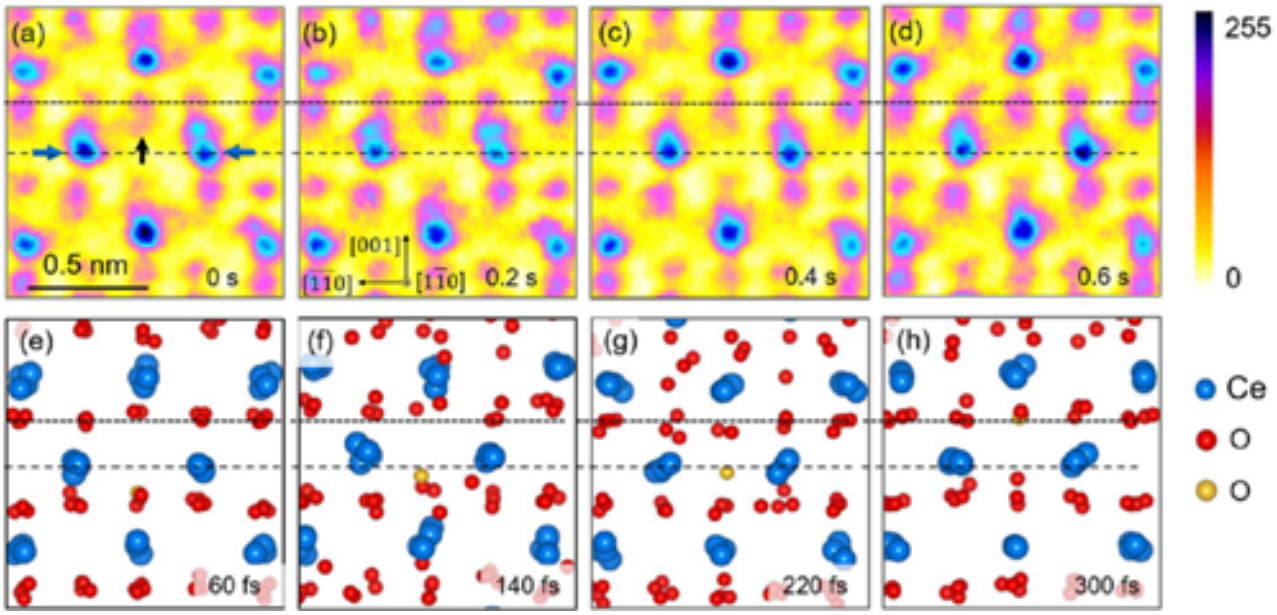


图2：O原子扩散与Ce原子重排过程的原位TEM成像以及分子动力学模拟。

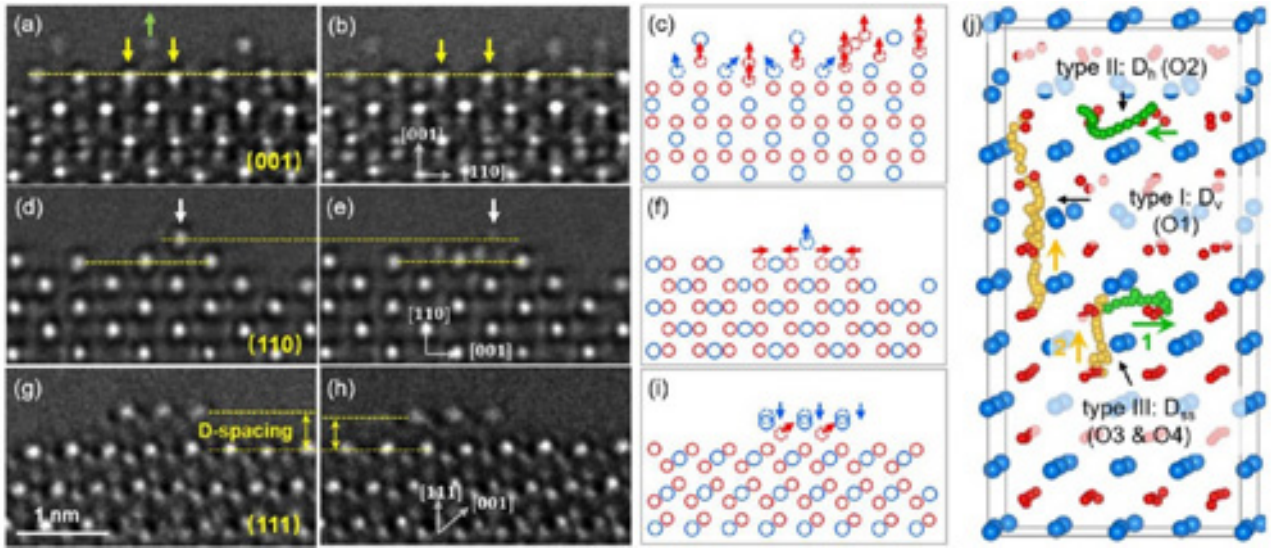


图3：CeO_2表面活性的原位TEM表征及氧原子输运动力学的分子动力学模拟。

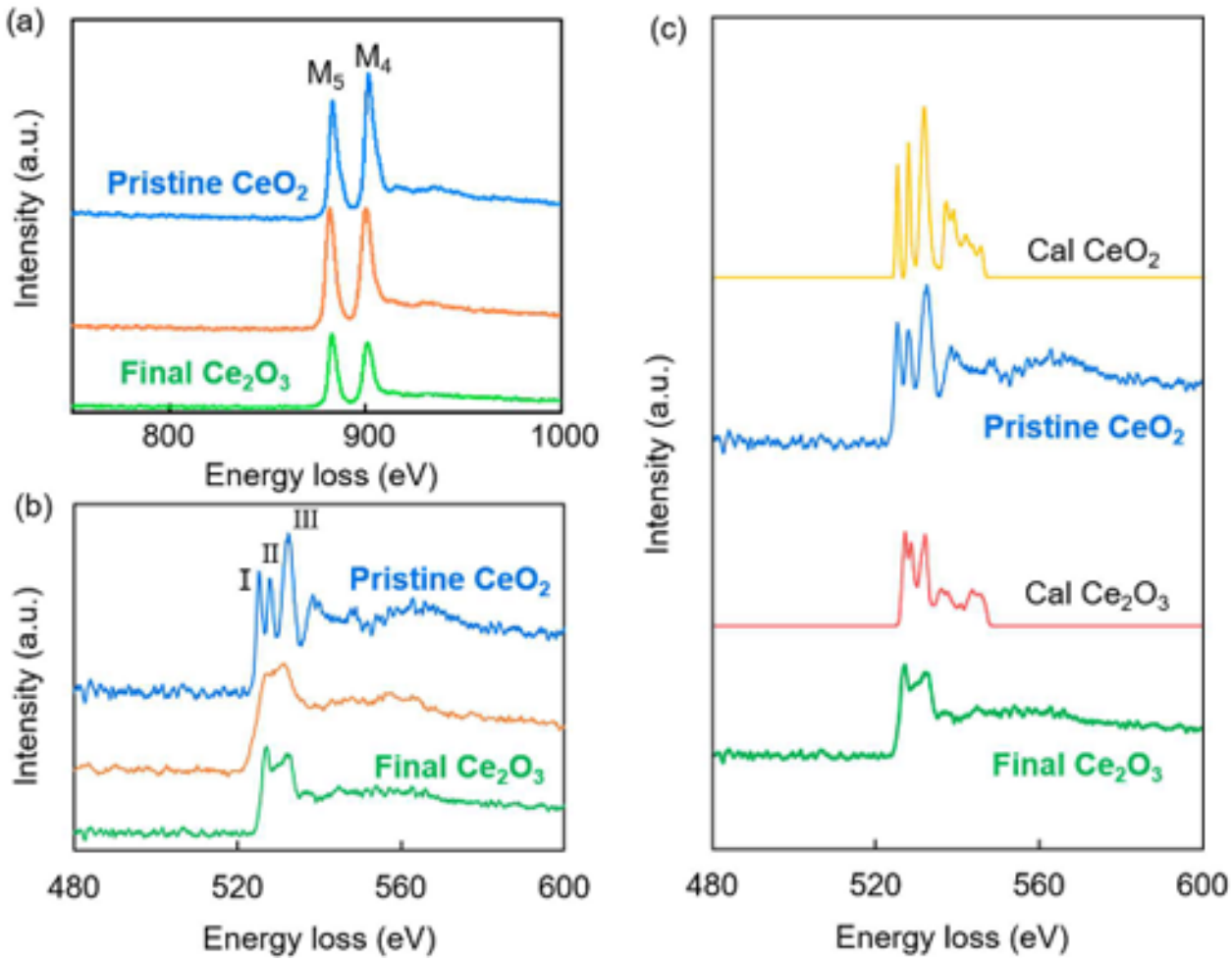


图4：电子能量损失谱揭示中间化学键状态的变化。

研究团队单位：物理研究所

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转发