

УДК-539,-544

ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ФИЗИЧЕСКОЙ СОРБЦИИ МОЛЕКУЛЯРНОГО ВОДОРОДА НА МОДЕЛЬНОЙ ПОВЕРХНОСТИ h-BN

Калякин Д.С.

Научный руководитель — к.ф.-м.н. Кузубов А.А.

Сибирский федеральный университет

В настоящее время активно изучается возможность использования углеродных структур в качестве сорбентов водорода, что открывает широкие перспективы в водородной энергетике и применении водорода в качестве эффективного топлива. Однако хемосорбция на углеродных структурах не происходит при нормальных температурах, а физическая сорбция гораздо слабее, чем на поверхностях с неравномерно распределенным зарядом. С этой точки зрения гораздо предпочтительнее является поверхность h-BN, в которой отрицательный заряд смещен в сторону атома азота.

Цель работы - теоретическое исследование сорбции молекулы водорода на поверхности h-BN.

Для определения оптимального положения молекулы водорода применяли метод Хартри-Фока и теорию возмущений Меллера-Плессета второго порядка с использованием набора базисных функций 6-31G**. Определение оптимального положения молекулы водорода вели на двух модельных участках, в центре которых были расположены:

1. в центре расположена связь B-N (рис. 1);
2. в центре - шестиугольник, образованный атомами бора и азота (рис. 2).

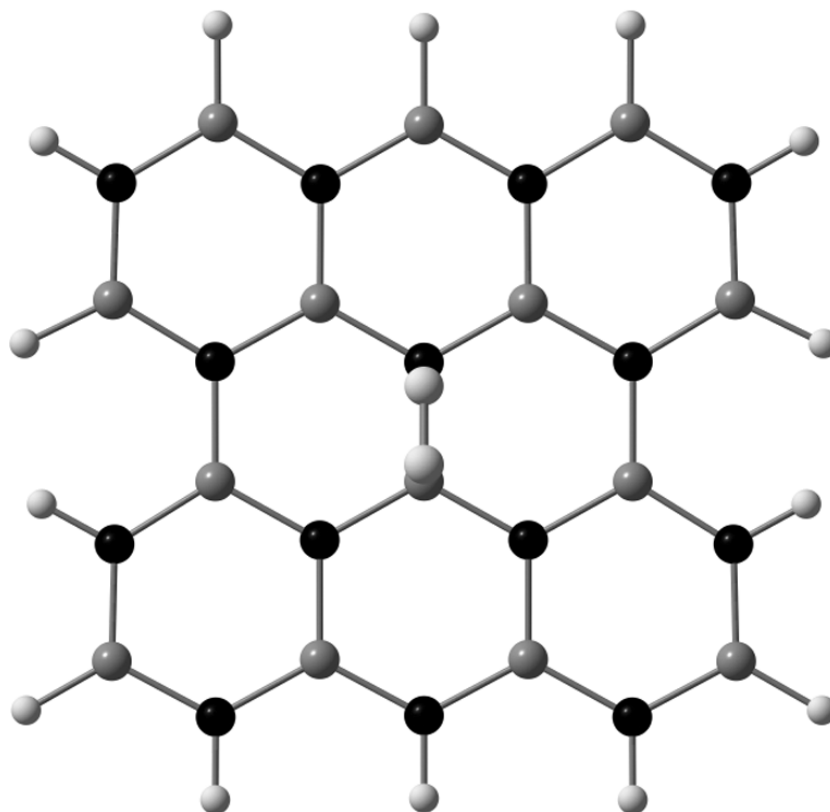


Рисунок 1: модельный участок 1 с сорбированной молекулой водорода горизонтально вдоль связи B-N.

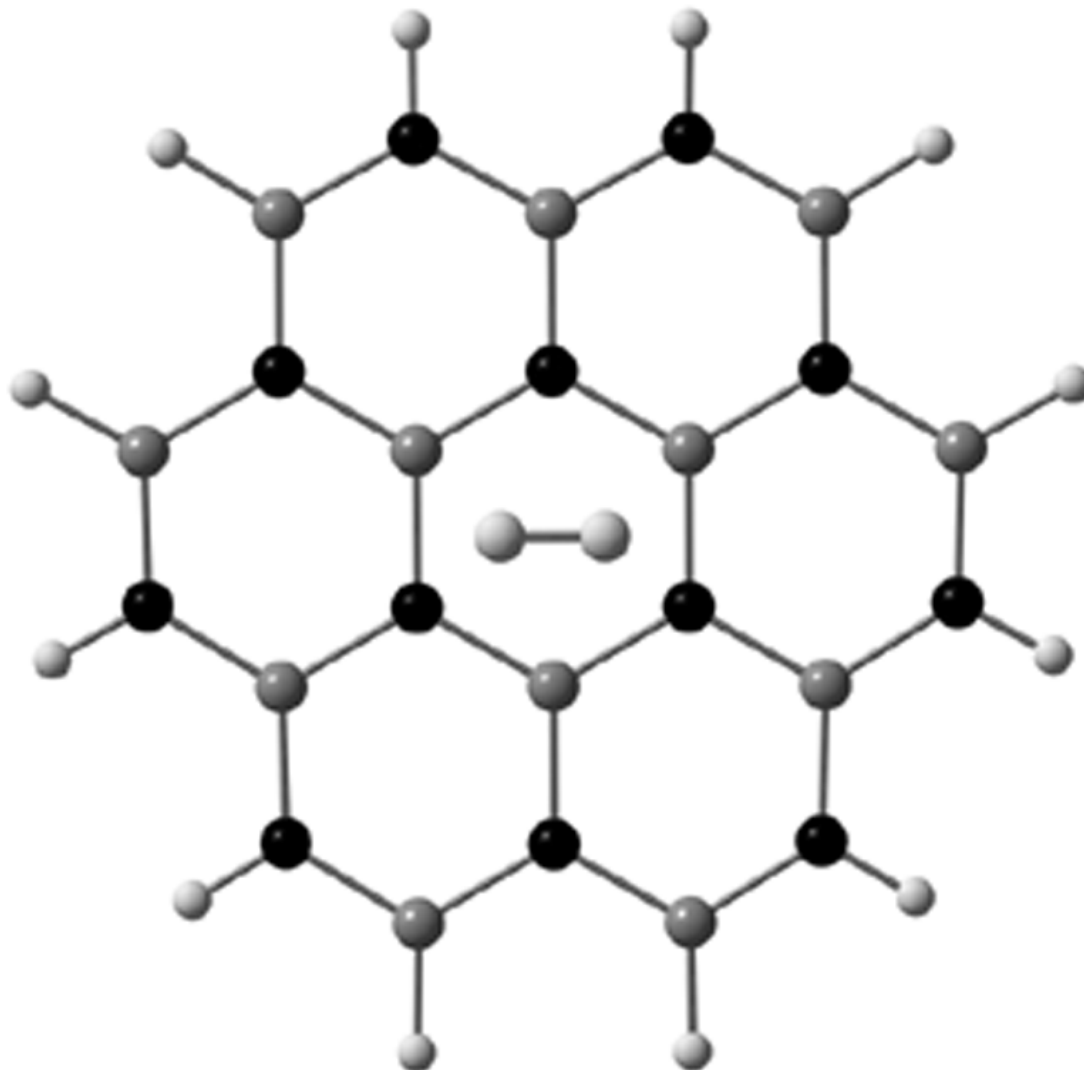


Рисунок 2: модельный участок 2 с молекулой водорода сорбированной горизонтально над шестиугольником, атомами водорода к связи B-N.

В ходе исследования рассчитана энергия вандерваальсового взаимодействия молекулы водорода на модельной поверхности h-BN в следующих положениях: для модельного участка 1 (таблица 1):

1. Над связью:
 - 1.1. горизонтально вдоль связи;
 - 1.2. горизонтально поперек связи;
 - 1.3. вертикально;
 - 1.4. горизонтально с поворотом в 45° в плоскости;
 - 1.5. горизонтально поперек связи с поворотом в 45° в пространстве;
 - 1.6. горизонтально вдоль связи с поворотом в 45° в пространстве верхним атомом водорода к атому бора;
 - 1.7. горизонтально вдоль связи с поворотом в 45° в пространстве верхним атомом водорода к атому азота.

2. Над бором:

- 2.1. горизонтально вдоль связи;
- 2.2. горизонтально поперек связи;
- 2.3. вертикально;
- 2.4 горизонтально с поворотом в 45^0 в плоскости;
- 2.5 горизонтально поперек связи с поворотом в 45^0 в пространстве.

3. Над азотом:

- 3.1. горизонтально вдоль связи;
- 3.2. горизонтально поперек связи;
- 3.3. вертикально;
- 3.4 горизонтально с поворотом в 45^0 в плоскости;
- 3.5 горизонтально поперек связи с поворотом в 45^0 в пространстве.

Таблица 1 Зависимость энергии вандерваальсового взаимодействия от положения атома водорода над модельным участком 1 поверхности h-BN

Положение	Энергия связи, эВ
1.1	-0.0208
1.2	-0.0193
1.3	-0.0333
1.4	-0.0181
1.5	-0.0210
1.6	-0.0278
1.7	-0.0237
2.1	-0.0224
2.2	-0.0232
2.3	-0.0314
2.4	-0.0234
2.5	-0.0266
3.1	-0.0156
3.2	-0.0104
3.3	-0.0357
3.4	-0.0108
3.5	-0.0252

для модельного участка 2 (таблица 2):

4. Над шестиугольником:

- 4.1. горизонтально атомами водорода к связи B-N;
- 4.2. горизонтально атомами водорода к атому бора и азота;
- 4.3. вертикально;
- 4.4. горизонтально с поворотом 15^0 в плоскости;
- 4.5. горизонтально с поворотом 45^0 в плоскости и пространстве;
- 4.6 горизонтально с поворотом 15^0 в плоскости и 45^0 в пространстве верхним атомом водорода к атому бора;
- 4.7 горизонтально с поворотом 45^0 в пространстве верхним атомом водорода к атому бора;
- 4.8 горизонтально с поворотом 15^0 в плоскости и 45^0 в пространстве верхним атомом водорода к атому азота;
- 4.9 горизонтально с поворотом 45^0 в пространстве верхним атомом водорода к атому азота.

Таким образом, были исследованы все возможные положения сорбции молекулы водорода на поверхности h-BN.

Таблица 2 Зависимость энергии вандерваальсового взаимодействия от положения атома водорода над модельным участком 2 поверхности h-BN

Положение	Энергия связи, эВ
4.1	-0.0233
4.2	-0.0230
4.3	-0.0343
4.4	-0.0233
4.5	-0.0244
4.6	-0.0247
4.7	-0.0250
4.8	-0.0243
4.9	-0.0242

Из проделанной работы можно сделать следующие выводы о том, что наиболее энергетически выгодным положением сорбированной молекулы водорода является ее вертикальное размещение над атомом азота (положение 3.3, рис.3). В остальных случаях, когда молекула водорода находится в других центрах сорбции (над атомом бора, над связью, над центром шестиугольника), наиболее выгодным так же является вертикальное размещение молекулы. Кроме того, выявлено, что, так как разница в энергии вандерваальсового взаимодействия среди различных вертикальных положений молекулы водорода незначительна (не превышает 0.0043 эВ) на поверхности h-BN может происходить миграция молекулы водорода от одного локального минимума к другому.

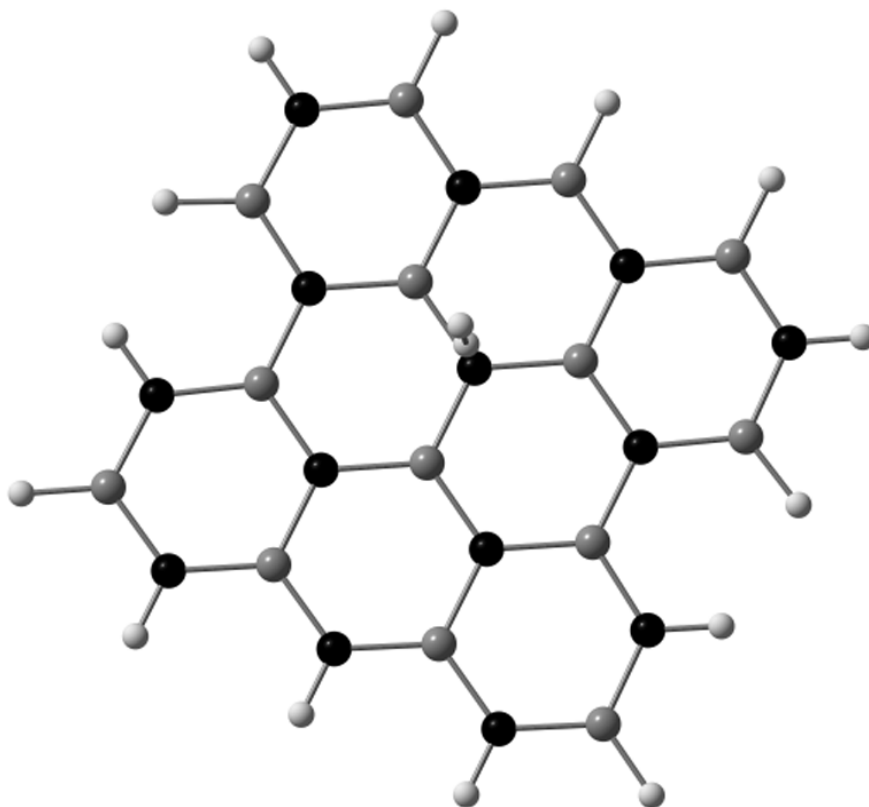


Рисунок 3. Наиболее выгодное положение молекулы водорода.