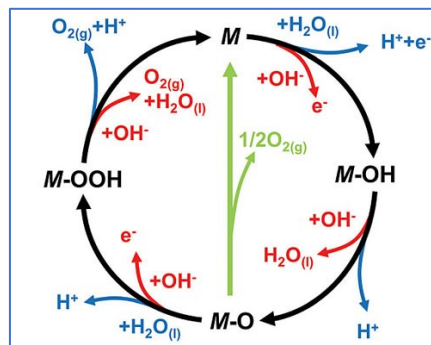


电催化台阶图的计算方法

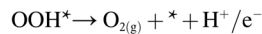
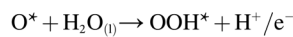
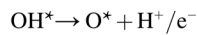
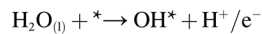
台阶图顾名思义，由它与台阶类似的形状而得名。在电催化计算中最常见的一种结果展示图形，从台阶图中可以获取基元反应各个步骤之间的能量变化，并且也可以得到电极电势等信息。好了话不多说，我们今天主要针对台阶图的计算步骤给大家进行讲解。

1、确定基元反应步骤

我们以 OER 反应机理研究为例进行说明。首先我们知道 OER 反应的总反应方程式为： $2\text{H}_2\text{O} = 2\text{H}_2 + \text{O}_2$ ，然而反应并不是一步完成的，OER 的分步反应是怎样的呢？关于这部分就需要大家去翻阅资料和文献了，比如小编就通过阅读资料找到了 OER 反应的分步示意图。



因此 OER 反应的分步反应方程式可以写为以下形式：

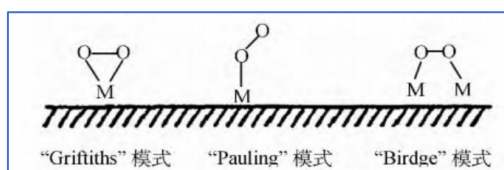


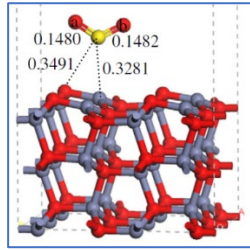
这样我们就完成了第一部分的工作。敲黑板啦!!! 这一步很重要哟，分步反应是我们后续计算的基础，因此地基一定要打好，否则就是在做无用功。OER 反应涉及的步骤较少，对于多步反应的大家一定要多思考、多确认。

2、搭建用于计算的结构模型

用于电催化计算的模型就是各种吸附模型，关于吸附模型如何搭建，我们之前也总结过一些文章，链接放在这里：[吸附模型如何搭建](#)，大家可以点击跳转查看。

为了计算台阶图，我们需要将分步反应中出现的各个中间态模型都搭建出来(H_2O^* ; OH^* ; O^* ; OOH^* ; O_2)，我们今天要说的是吸附模型搭建的另一种注意事项：分子的吸附方法，针对反应第一步 O_2 的吸附模型，会有如下三种吸附可能，因此在搭建模型时我们需要将可能不同的吸附模式都搭建出来(在计算完成后获取最佳吸附结构和最佳反应步骤)。对于吸附模式有哪些，我们也需要根据不同的吸附分子进行判断。





最终的吸附模型

3、DFT 计算获取结构能量

在吸附结构搭建完成之后就可以利用 DFT 进行计算了，首先需要进行结构优化确定吸附结构的稳定构型，之后利用静态计算得到体系的能量，之后针对吸附分子我们再利用频率计算对吸附分子做自由能矫正。

接下来我们通过 MatCloud+ 进行操作，选用 MatCloud+ 的原因，在于仅通过浏览器就可使用，无需下载任何软件。在 MatCloud+ 中我们可以通过搭建如下所示的工作流一次完成多结构多步骤的计算，并且此工作流可以重复使用。MatCloud+ 作为国内首家正式上线的材料高通量计算平台，将传统计算方法简易化，帮助更多的人快速开展计算模拟。工作流由通用导入组件、结构优化、静态计算、频率计算四个组件构成，然后对每个组件进行相应的参数设置即可。在设置参数时，可以将结构对称性打破 (ISYM=0)，频率计算和静态计算的收敛标准高于结构优化，在计算时我们可以将结构的基底固定部分原子，(频率计算可以固定所有基底原子)，固定原子的方法可以参考此链接：固定原子的方法。

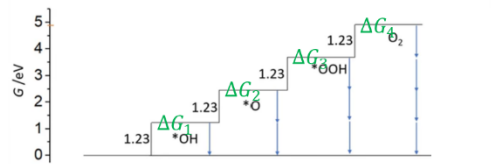


4、绘制台阶图

在第 1 步中我们已经知道了分布反应步骤，第 3 步中计算得到每个中间产物 (H₂O*; OH*; O*; OOH*; O₂) 的能量，我们需要先计算出每步的反应自由能，如： $\Delta G_1 = G_{OH^*} + G_{H^+/e^-} - G_{H_2O} - G_*$ 。在绘制台阶图的时候我们可以利用如下的表格来辅助：

结构	能量	自由能	反应自由能
H ₂ O			
*			
OH*			
等			

在得到反应自由能之后，我们就可以按照反应步骤绘制台阶图了，一般台阶图会将初始的结构能量视为 0，就得到了如下图所示的图了：



理想台阶图

以上就是电催化台阶图的计算流程，希望对大家有所帮助，后期还会发布更多干货，如果您想了解更多，请持续关注我们。

更多 Matcloud+教程可关注 **b 站迈高科技**
 更多动态请关注迈高科技微信公众号

