

Väitöstiedote

Väitös 18.11.2022

# Molekyylidynamiikan merkitys sähköisten rajapintojen ja vedynkehityksen mallinnuksessa

|  |  |
|--|--|
| Väitöskirjan nimi                      | Dynamics of Electrified Interfaces and Hydrogen Evolution from Density Functional Theory   |
| Väitöskirjan sisältö                   | <p>Sähköiset kiinteän aineen ja nesteen väliset rajapinnat ovat keskeisiä sekä luonnossa että teollisissa sovelluksissa. Uusien kustannustehokkaiden katalyyttien kehitys näillä rajapinnoilla tapahtuvien sähkökemiallisten reaktioiden kiihdyttämiseksi onkin ensisijaisen tärkeää kestävien energiankonversio-menettelmien, kuten polttokennojen ja elektrolyysereiden, käyttöönoton mahdollistamiseksi. Koska sähkökatalyytin tehokkuuden määräävät tekijät ovat pohjimmiltaan atomi- ja elektronitason ilmiöitä, on yleistä, että kokeellisia tutkimuksia täydennetään kvanttimekaanisten tietokonesimulaatioiden avulla. Käytetyimpiä laskennallisia menetelmiä ovat tiheysfunktionaaliteoriaan pohjautuvat mallit, joskin näissä on perinteisesti jouduttu tehokkuussyistä käyttämään staattisia kuvauksia rajapinnan rakenteesta, mikä heikentää laskujen tarkkuutta.</p> <p>Tässä väitösprojektissa tutkittiin dynamiikan merkitystä sähkökemiallisten rajapintojen ja vedynkehityksen tietokonemallinnuksessa. Vedynkehitysreaktio on veden elektrolyysin katodinen puolireaktio, jonka tehokas katalysoiminen on keskeistä vihreän vedyn tuotannossa. Tiheysfunktionaaliteoriaan perustuvien molekyylidynamiikkasimulaatioiden avulla pyrittiin erityisesti selvittämään miten dynamiikan ja reaktio-olosuhteiden tarkka huomiointi vaikuttaa vedytettyjen yksittäiskiteisten Pt(111)-elektrodien rakenteeseen ja laskennalliseen aktiivisuuteen. Saadut tulokset korostavat pinnan peittoasteen, elektrodipotentiaalin sekä liuottimen dynamiikan merkitystä ja viitoittavat tietä kohti entistä tarkempia sähkökemiallisia simulaatioita.</p> |
| Väitöskirjan ala                       | Laskennallinen kemia   |
| Väittelijä ja väittelijän yhteystiedot | Diplomi-insinööri Rasmus Kronberg<br>rasmus.kronberg@aalto.fi  |
| Väitöksen ajankohta                    | 18.11.2022 klo 12  |
| Etäväitöksen osoite                    | <a href="https://aalto.zoom.us/j/65488073782">https://aalto.zoom.us/j/65488073782</a>  |
| Paikka                                 | Aalto-yliopiston kandidaattikeskus, E-sali, Otakaari 1, Espoo  |
| Vastaväittäjä                          | Professori Axel Gross, Universität Ulm, Saksa  |
| Valvoja                                | Professori Kari Laasonen, Aalto-yliopiston kemian tekniikan korkeakoulu  |
| Väitöskirjan verkko-osoite             | <a href="https://aalto.doc.aalto.fi/handle/123456789/51">https://aalto.doc.aalto.fi/handle/123456789/51</a>  |
| Avainsanat                             | tiheysfunktionaaliteoria, sähkökatalyyssi, vedynkehitys, rajapinnat, molekyylidynamiikka, platina, termodynaaminen integrointi   |

Press release

Public Defence on 18 November 2022

# Effects of molecular dynamics in modeling electrified interfaces and hydrogen evolution

|   |   |
|---|---|
| <b>Title of the doctoral thesis</b>               | Dynamics of Electrified Interfaces and Hydrogen Evolution from Density Functional Theory  |
| <b>Content of the doctoral thesis</b>             | <p>Electrified solid–liquid interfaces are ubiquitous in nature and technological applications. Developing cost-effective catalysts to drive the electrochemical reactions occurring at these interfaces is essential to facilitate a sustainable deployment of energy conversion devices such as electrolyzers and fuel cells. To complement experiments in this important effort, atomistic computational simulations based on density functional theory are frequently applied, although mainly using static representations of the aqueous interfaces with possibly adverse effects on accuracy.</p> <p>In this thesis, a holistic approach was taken to explore the influence of interfacial dynamics in computational models of electrochemical interfaces and hydrogen evolution. The hydrogen evolution reaction is the cathodic half-reaction of electrolytic water splitting, the efficient catalysis of which is pivotal to the production of green hydrogen. Density functional theory-based molecular dynamics simulations carefully accounting for the experimentally relevant reaction conditions were employed to especially reassess the structure and computational activity of hydrogenated monocrystalline Pt(111) electrodes. The obtained results underscore the importance of surface coverage, electrode potential and solvent effects, paving the way for less biased electrochemical simulations.</p> |
| <b>Field of the doctoral thesis</b>               | Computational Chemistry   |
| <b>Doctoral candidate and contact information</b> | M.Sc. (Tech.) Rasmus Kronberg<br>rasmus.kronberg@aalto.fi   |
| <b>Public defence date and time</b>               | 18 November 2022 at 12 o'clock (in Finnish time)  |
| <b>Remote defence</b>                             | <a href="https://aalto.zoom.us/j/65488073782">https://aalto.zoom.us/j/65488073782</a>   |
| <b>Place of public defence</b>                    | Aalto University Undergraduate Center, Lecture hall E, Otakaari 1, Espoo  |
| <b>Opponent</b>                                   | Professor Axel Gross, Ulm University, Germany   |
| <b>Custos</b>                                     | Professor Kari Laasonen, Aalto University School of Chemical Engineering  |
| <b>Link to electronic thesis</b>                  | <a href="https://aaltodoc.aalto.fi/handle/123456789/51">https://aaltodoc.aalto.fi/handle/123456789/51</a>   |
| <b>Keywords</b>                                   | density functional theory, electrocatalysis, hydrogen evolution, interfaces, molecular dynamics, platinum, thermodynamic integration  |