[Highlight]

doi: 10.3866/PKU.WHXB201602171

www.whxb.pku.edu.cn

二维原子晶体：新型的高效氢同位素分离滤膜

付 磊

(武汉大学化学与分子科学学院, 武汉 430072)

氢同位素对于现代分析方法和示踪技术非常重要, 其重要化合物——重水更是作为减速剂被广泛用于核裂变中。然而, 现有的氢同位素分离技术, 如水-硫化氢交换和低温蒸馏法, 能耗极大, 且分离效率很低(分离因子 < 2.5)¹。因此, 发展低能耗、高效的氢同位素分离技术是一项极具挑战的工作。近期, 单原子层厚度的石墨烯和氮化硼为氢同位素的分离带来了突破, 它们作为仅能通过热质子和电子的单层原子晶体, 在分离氢同位素时表现出非凡的亚原子选择透过性。诺贝尔物理学奖获得者 Geim 教授研究组²以单层石墨烯和氮化硼这样一个极简的体系作为滤膜, 在室温下成功分离了氢同位素, 且石墨烯滤膜的分离因子高于 10。这项研究成果已在最新的 *Science* 上发表。

在该项研究中, 他们采用了两种互补型方法——测量电导率和质谱检测气流, 探索了二维原子晶体对氘核(D^+)和氢核(H^+)的选择性。以后一种方法为例, 他们通过输入一系列不同比例的 H^+ 、 D^+ 混合溶液, 发现氢同位素均能透过石墨烯, 但输出的氢原子分数与输入的 H^+ 是不相称的(如图 1b 所示), 由图 1b 计算分离因子约为 10, 即证实了石墨烯确实能高效地分离氢同位素。这种

高选择性其实是归因于同位素效应, 换言之, 即二维原子晶体对氢核和氘核的传输能垒是不同的。那么能垒差源自何处呢? 在该体系中, 在透过二维原子晶体前, 氢核和氘核会与溶液里的基团及水形成氢键³, 而对于两者而言, 其氢氧键的零点能是不同的, 两者表现出 60 meV 的能垒差。因此, 可以推断如果质子传导介质具有更强的氢键, 分离因子会更大, 则更有利于氢同位素的高效分离。而且值得注意的是, 除了剥离法, 化学气相沉积(CVD)法所制得的石墨烯和氮化硼同样在筛离氢同位素方面表现出色, 他们基于此建立了厘米级尺寸的设备, 并成功从氘和氢混合物中有效地泵出了氢, 证明了此技术的可扩展性。

此项研究表明, 石墨烯及氮化硼对氢同位素具有优异的选择性, 使得其能够有效分离氢同位素。基于 CVD 法制备的大面积石墨烯, 用简单的筛分机制和分离设备, 并结合具有强的氢键的质子传导介质, 未来科学家们有望实现氢同位素的工业化分离。此外, 这种同位素分离法无需添加其它化学物质, 能耗显著低于现有的分离富集过程, 从而能有效地缓解能源和环境压力, 有望在分析和化学示踪技术上发挥作用, 并真正地用于核废料的处理上, 成为新一代超级“过滤器”。

图1 质谱检测气流法探测石墨烯对氢同位素的分离效果

(a) 质谱仪装置示意图; (b) 输出气流组分分布随输入 H^+ 组分的变化关系图

References

- (1) Miller, A. I. *Can. Nucl. Soc. Bull.* **2001**, 22 (1), 1.
- (2) Lozada-Hidalgo, M.; Hu, S.; Marshall, O.; Mishchenko, A.; Grigorenko, A. N.; Dryfe, R. A. W.; Radha, B.; Grigorieva, I. V.; Geim, A. K. *Science* **2016**, 351 (6268), 68. doi: 10.1126/science.aac9726
- (3) Mauritz, K. A.; Moore, R. B. *Chem. Rev.* **2004**, 104 (10), 4535. doi: 10.1021/cr0207123