

University of Groningen

Porous Carbon-Based Composites for Lithium-Sulfur Batteries

Xiang, Yinyu

DOI:
[10.33612/diss.788185400](https://doi.org/10.33612/diss.788185400)

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version
Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:
2023

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):

Xiang, Y. (2023). *Porous Carbon-Based Composites for Lithium-Sulfur Batteries*. [Thesis fully internal (DIV), University of Groningen]. University of Groningen. <https://doi.org/10.33612/diss.788185400>

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

Samenvatting

In dit proefschrift zijn verschillende poreuze koolstofmaterialen en hun composieten ontwikkeld en geconfigureerd als verschillende componenten in Li-S-batterijen. Er zijn aanzienlijke vorderingen gemaakt, waaronder de optimalisatie van kathodes van zwavel/poreuze koolstofcomposieten, de configuratie van op poreuze koolstofnanovezels (CNF's) gebaseerde tussenlagen en de stabilisatie van Li-metaal anodes met behulp van op CNF's gebaseerde stroomcollectoren, om de uitdagingen van de Li-S-cellen aan te pakken. Met sterk verbeterde elektrochemische prestaties als gevolg.

In hoofdstuk 2 werd de bereiding van hiërarchische poreuze koolstofatomen (HPCs) en hun functies als verschillende componenten in Li-S-batterijen uitgebreid besproken. Het literatuuronderzoek beschreef met synthetische methoden voor de bereiding van HPC's, waaronder de harde-templatingmethode, de zachte-templatingmethode, de zelf-templatingmethode, de harde en zachte templatingmethode en de templating- en activeringsmethode. Vervolgens werden op HPC's gebaseerde hoogwaardige zwavelkathoden benadrukt, en werd ook de correlatie tussen structuren (porievolume, specifiek oppervlak, mate van poriën en heteroatoomdoring) van HPC's en de elektrochemische prestaties van S@HPC's-kathoden uitgewerkt. Vervolgens werden respectievelijk de configuraties van op HPC's gebaseerde coatinglagen/tussenlagen voor het functionaliseren van scheidings- en stroomcollectoren bij het onderdrukken van de polysulfidemigratie en het stabiliseren van Li-anodes besproken. Ten slotte werd er een discussie gegeven over de uitdagingen die gepaard gaan met Li-S-batterijen.

Vervolgens werd in hoofdstuk 3 de aspectverhouding van geordende mesoporeuze koolstof (OMC)-gebaseerde zwavelgastheer geoptimaliseerd. OMC's met variabele groottes werden gesynthetiseerd door middel van omgekeerde replicatie met behulp van geordende mesoporeuze silica (OMS) harde sjablonen. Vervolgens werden de overeenkomstige S@OMCs-kathodes verkregen door middel van de smeltmethode. Na systematische elektrochemische metingen (cyclische voltammetrie, elektrochemische impedantie, galvanostatische intermitterende titratietechniek en galvanostatische lading-ontlading) en karakterisering (elektronenmicroscopie en röntgenverstrooiing onder kleine hoeken), werd aangetoond dat S@OMC-1.2 met een gemiddelde lengte en grootste breedte de beste elektrochemische prestaties vertoonde naarmate er meer ontladen product wordt gegenereerd.

Om vervolgens de zwavelgastheer te voorzien van chemisorptie ten opzichte van polysulfiden en het zwavelgehalte en de elektrochemische prestaties verder te verbeteren, werden in hoofdstuk 4 kobalt/koolstofbolletjes geïntroduceerd in CNTs (Co-C-CNTs). De hiërarchische poreuze koolstofraamwerken met een groot porievolume en een hoog specifiek oppervlak (SSA) verlichtte de volume-uitwisseling en beperkte de polysulfiden fysiek. De gedeeltelijk achtergebleven kobaltanodeeltjes waren gunstig voor de chemische adsorptie en redoxreactie van polysulfiden. Met de synergetische effecten van een fysieke barrière en chemische adsorptie ten opzichte van polysulfiden, vertoonden de verkregen S @ Co-C-CNTs-kathodes een ultrahoge ontladingscapaciteit (1568 mAh g⁻¹) evenals verbeterde cyclische stabiliteit.

Naast de optimalisatie van zwavelgastheren is de configuratie van tussenlagen tussen zwavelkathodes en scheiders ook effectief bij het onderdrukken van het ontsnappen van polysulfiden en dient het als tweede stroomcollectoren. In hoofdstuk 5 werden de kristalliniteiten van titaniumnitride (TiN) film op in koper ingebedde koolstofnanovezels (Cu-CNF's) afgestemd en werden de nanovezels als tussenlagen in Li-S-batterijen geplaatst. De laag-kristallijne titaniumnitride gecoate Cu-CNF's (L-TiN-Cu-CNF's) tussenlaag werd systematisch vergeleken met zijn hoogkristallijne tegenhanger (H-TiN-Cu-CNF's). De L-TiN-coating versterkte niet alleen de chemische adsorptie aan polysulfiden, maar vergemakkelijkte ook aanzienlijk de redoxomzettingen van polysulfiden. Dankzij robuuste poreuze koolstofframeworks en verbeterde kinetiek werden indrukwekkende hoge prestaties bij 2C (913 mAh g⁻¹) en opmerkelijke cyclische stabiliteit tot 300 cycli (626 mAh g⁻¹) bereikt. Bovendien vertoonden de met L-TiN-Cu-CNFs tussenlagen uitgeruste Li-S-cellen (zwavelbelasting: 3,8 mg cm⁻²) een hoge oppervlaktecapaciteit (4,35 mA cm⁻²), die 2,2 maal hoger was dan die van commerciële LiCoO₂ (LiCoO₂). belasting: 14,4 mg cm⁻²) kathode.

Om lithium-metaalanodes te beschermen tegen gevaarlijke dendritische groei en afbraak, presenteerde hoofdstuk 6 het uitgebreide ontwerp en de grootschalige fabricage van een 3D-stroomcollector bestaande uit met stikstof gedoteerde poreuze koolstofvezels met overvloedige op koper gebaseerde Cu/Cu₃P-heterostructuurversieringen (Cu/Cu₃P-N-CNF's). De 3D-hiërarchische poreuze structuur verlichtte de enorme volumevariatie tijdens Li-plating/stripping-processen en verminderde de lokale stroomdichtheid. De lithiofiële, met stikstof gedoteerde koolstofplaatsen en de ingebedde functionele Cu/Cu₃P-heterostructuur zorgden voor een overpotentiaal met ultralage kernvorming en kleine polarisatie. Cu/Cu₃P-N-CNFs-elektroden vertoonden dus een hoge Coulomb-efficiëntie (~94%) gedurende 500 cycli bij 1 mA cm⁻² met een capaciteit van 1 mAh cm⁻². Belangrijker nog: uitstekende elektrochemische prestaties werden gerealiseerd voor zowel symmetrische cellen als volledige Li-S-cellen door de ontwikkelde Li@Cu/Cu₃P-N-CNF's-anodes.