

Povzetek

Povečana svetovna poraba energije kliče po razvoju novih akumulatorjev z visoko energijsko gostoto. Zamenjava interkalacijskih oziroma konverzijskih anod s kovinskim litijem je zato ključni korak pri razvoju akumulatorjev z izboljšano energijsko gostoto. Najsodobnejši akumulatorji s kovinskim litijem so trenutno še v razvoju, predvsem zaradi težav z nizko Coulombsko učinkovitostjo in pomanjkljivo varnostjo, ki je posledica prisotnosti termodinamsko nestabilnega pasivnega sloja elektrolita na medfazni meji (SEI) kovinski litij/elektrolit. Nestabilen SEI se tvori v večini tekočih elektrolitov, kar vodi do tvorbe visoko površinskega litija (HSAL). Proti nastanku tvorbe HSAL lahko uporabimo različne pristope, vključno s pripravo zaščitnega sloja na litijevi površini. Zaščitni sloj mora biti visoko Li-ionsko prevoden, elektronsko neprevoden, hkrati pa mora biti čim tanjši in z visokim modulom elastičnosti, da lahko prenese stres, ki se pojavi med elektrokemijskim jedkanjem in odlaganjem litija znotraj celice.

V doktorskem delu smo raziskali tri različne pristope, ki smo jih uporabili kot zaščitni sloj na litijevi površini, da bi preprečili rast HSAL. Zaščitne sloje smo okarakterizirali z elektrokemijskimi meritvami, z uporabo vrstične elektronske mikroskopije in rentgenske foto-elektronske spektroskopije ter z drugimi tehnikami.

Pokazali smo, da lahko s funkcionalizacijo grafena krojimo njegove elektronske in ionske lastnosti, kar posledično omogoča uporabo v aplikacijah zaščitnega sloja. V litijevi simetrični celici smo proučevali vpliv grafen oksida (GO), reduciranega grafen oksida (rGO) in fluoriranega reduciranega grafen oksida (FG) kot zaščitnega sloja na litijevi površini za preprečevanje rasti HSAL. Poleg tega smo delovanje FG zaščitnega sloja ovrednotili tudi v Li-ionskem in Li-žveplovm akumulatorju v karbonatnih in etrskih elektrolitih. Fizikalne lastnosti in elektrokemijske meritve so pokazale dvojno vlogo FG zaščitnega sloja. Prvič deluje kot Li-ionski prevodnik in hkrati elektronski izolator na površini kovinskega litija in drugič uspešno zavira rast HSAL. Izboljšana elektrokemijska zmogljivost akumulatorja z FG zaščitenim litijem kaže na potencialno uporabo v modernih akumulatorjih z visoko energijsko gostoto.

Kovinska fluorida (MgF_2 in AlF_3) smo preučevali kot prekursorja za tvorbo zaščitnega sloja na litijevi površini. Uporaba litija z MgF_2 modificirano površino je vodila do nastajanja gostejših litijevih depozitov, povečane stabilnosti v litij simetrični celici in podaljšano življenjsko dobo Li-žveplovega akumulatorja s fluoriranimi elektroliti.

In-situ anionska polimerizacija trimetilolpropan etoksilat triakrilata na litijevi površini je povzročila popolnoma blokiran Li-ionski transport skozi zaščitni sloj, kar je posledično izpostavilo t.i. »robni efekt«. V ta namen smo oblikovali novo konfiguracijo celice, ki je omogočila natančnejše elektrokemijsko vrednotenje zaščitnega sloja brez vpliva »robnega efekta«.

Ključne besede: Li-žveplov akumulatorji, akumulatorji s kovinskim litijem, umetni SEI, zaščitni sloj, preprečitev dendritske rasti, grafen oksid, reduciran grafen oksid, fluoriran reduciran grafen oksid, kovinski fluorid, anionska polimerizacija, trimetilolpropan etoksilat triakrilat, robni efekt.