

金属所在基于金刚石/膨胀垂直石墨烯的层状限域双电层电容行为的研究获进展

多孔或层状电极材料具有丰富的纳米限域环境，表现出高效的电荷储存行为，被广泛应用于电化学电容器。而这些限域环境中形成的双电层（限域双电层）结构与建立在平面电极上的经典双电层之间存在差异，导致其储能机理尚不清晰。因此，解析限域双电层结构对探讨这类材料的电化学电容存储机理和优化电化学电容器件的性能具有重要意义。

中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家研究中心项目研究员黄楠团队与比利时哈塞尔特大学教授杨年俊合作，设计并制备了具有规则有序0.7 nm层状亚纳米通道的膨胀垂直石墨烯/金刚石复合薄膜电极。其中，金刚石与垂直膨胀石墨烯纳米片共价连接，作为机械增强相为构筑层状限域结构起到支撑作用。进一步，研究发现，该电极表现出离子筛分效应，离子部分脱溶等典型的限域电化学电容行为，是研究限域双电层的理想电极材料。基于该材料，科研人员利用原位电化学拉曼光谱和电化学石英晶体微天平技术分别监测充放电过程中电极材料一侧的响应行为和电解液一侧的离子通量发现，在阴极扫描过程中，电极材料一侧出现拉曼光谱峰劈裂现象，溶液一侧为部分脱溶剂化阳离子主导的吸附过程。该研究综合以上实验结果并利用三维参考相互作用位点隐式溶剂模型的第一性原理计算方法，在原子尺度上评估了限域双电层中离子-碳宿主相互作用，揭示了在限域环境中增强的离子-碳宿主相互作用会诱导电极材料表面产生高密度的局域化图像电荷。该工作完善了限域双电层电容的电荷储存机理，为进一步探讨纳米多孔或层状材料在电化学储能中的功能奠定了基础。

8月9日，相关研究成果以Highly localized charges of confined electrical double-layers inside 0.7-nm layered channels为题，在线发表在《先进能源材料》（Advanced Energy Materials）上。研究工作得到国家自然科学基金和德国研究联合会基金的支持。

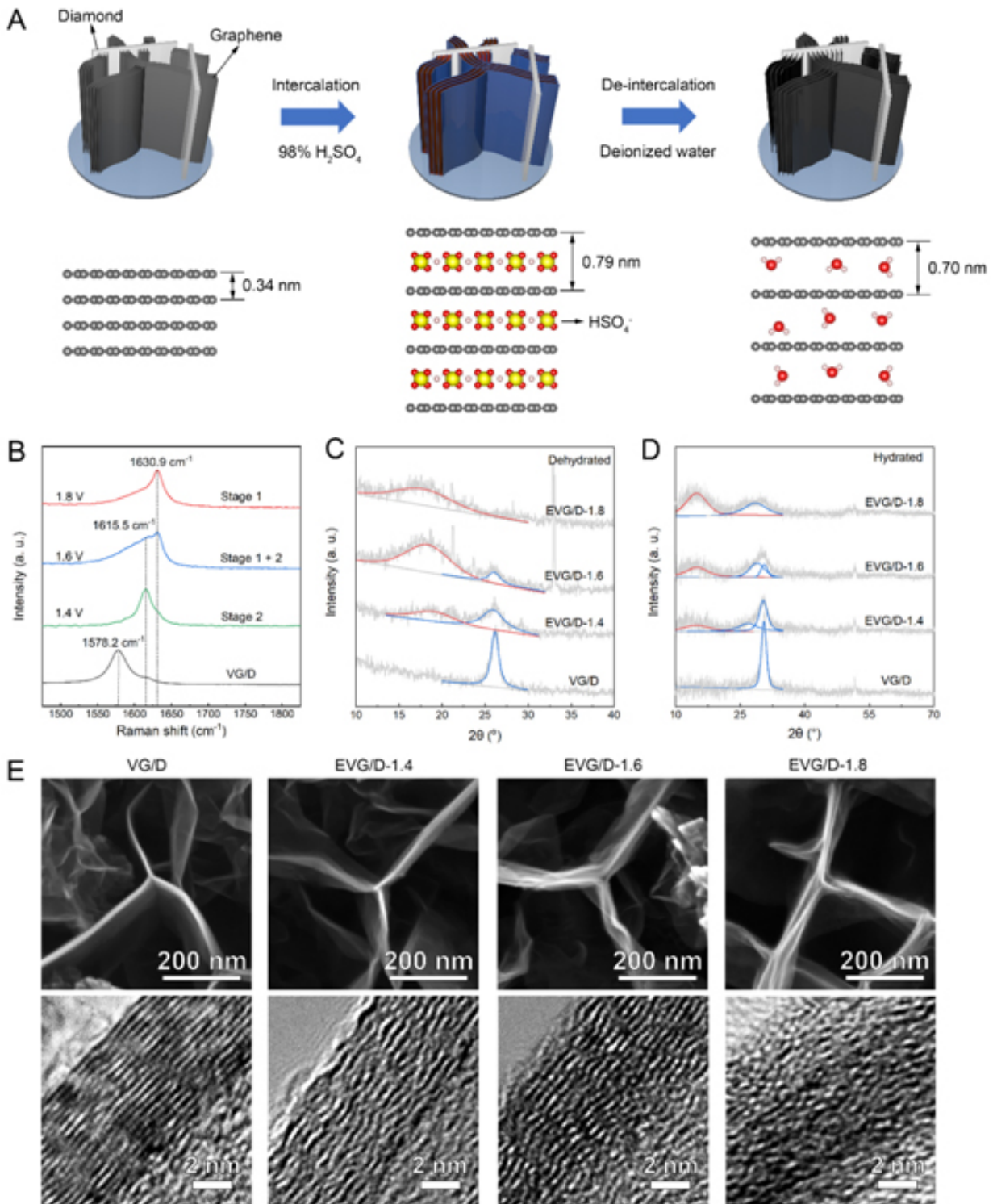


图1. 层状限域双电层膨胀垂直石墨烯/金刚石薄膜电极的制备和表征：(A) 制备流程示意图；(B) 石墨插层化合物的拉曼光谱；(C-D) XRD图谱；(E) SEM和TEM图像。

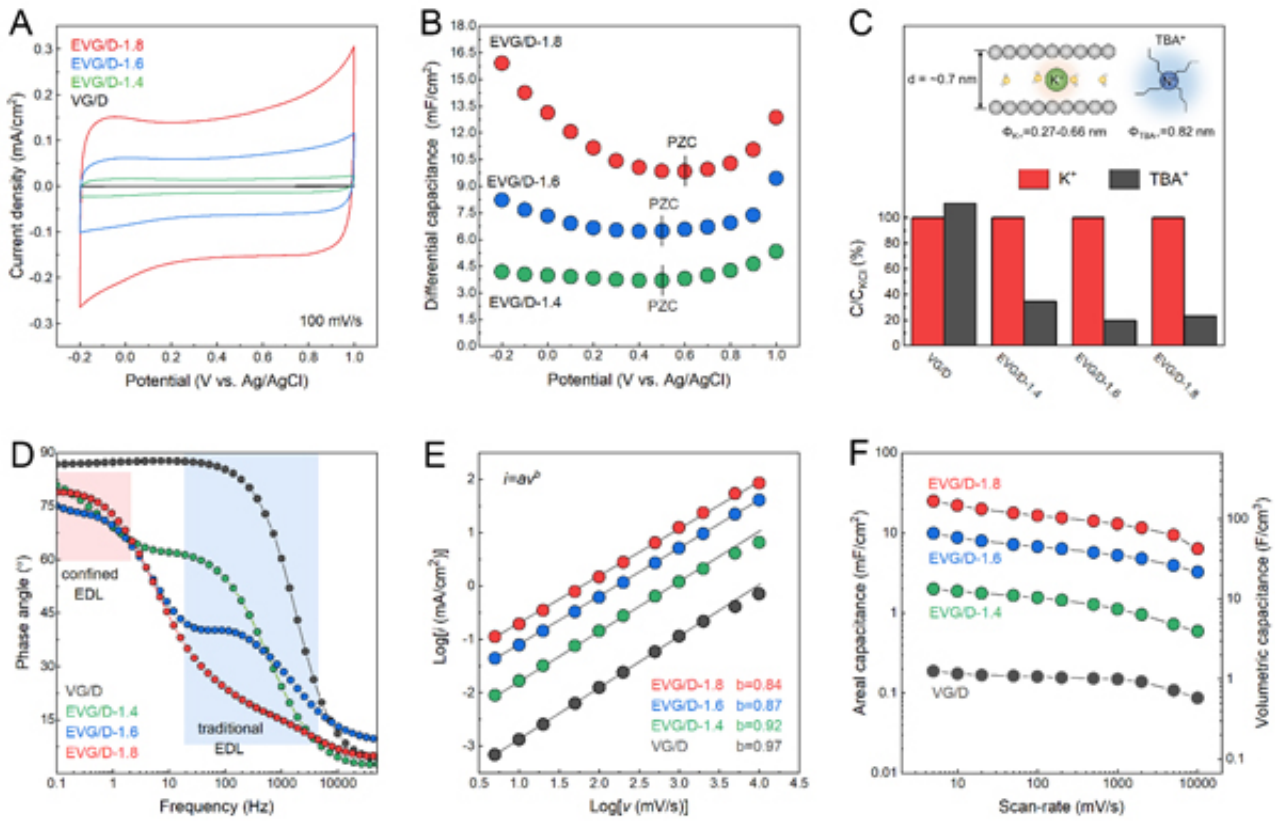


图2. 层状限域双电层膨胀垂直石墨烯/金刚石薄膜电极的电化学行为：(A) CV曲线；(B) 微分电容-电极电势关系；(C) 离子筛分效应；(D) EIS图谱；(E-F) 动力学分析。

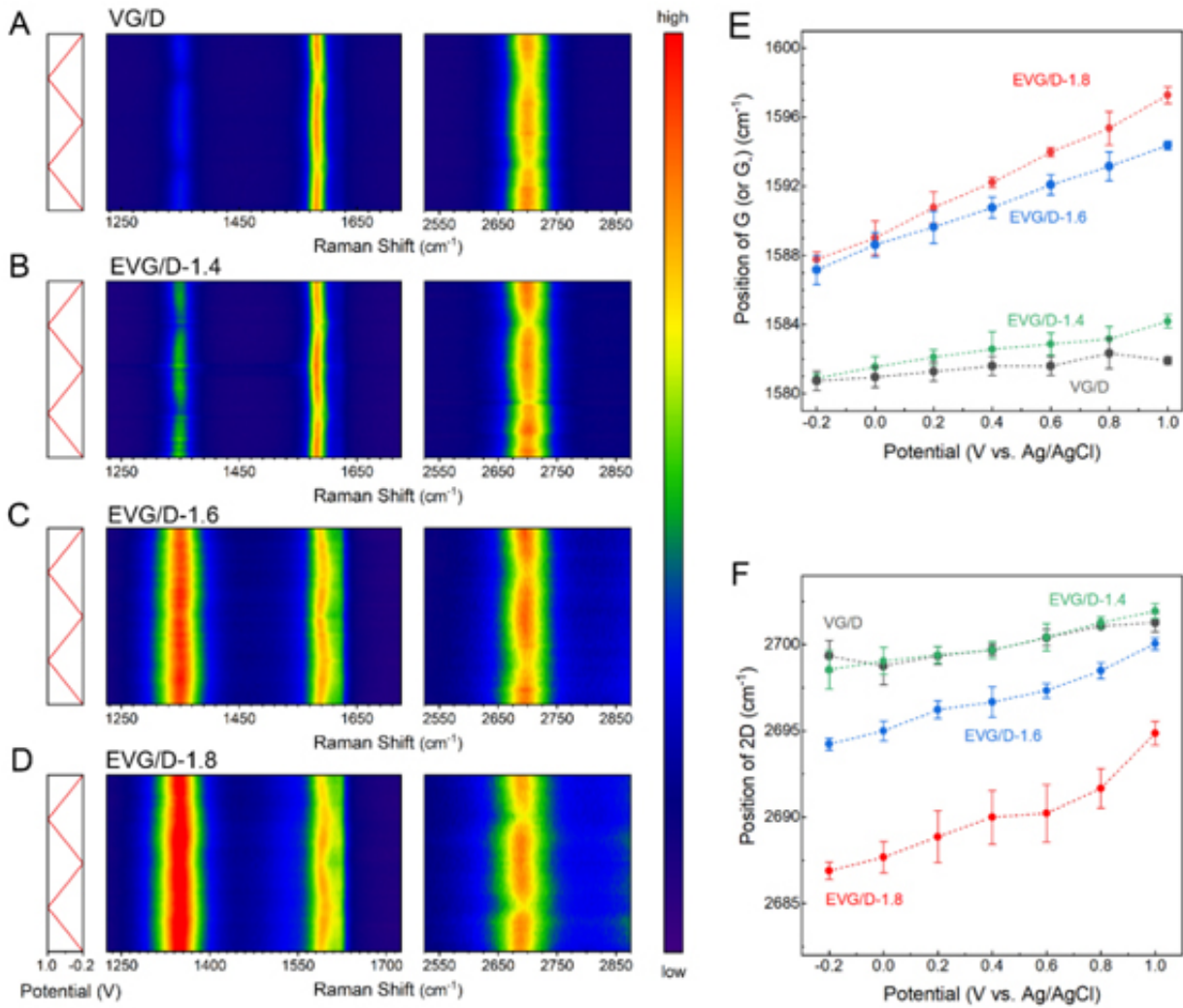


图3. 层状限域双电层膨胀垂直石墨烯/金刚石薄膜电极的原位电化学拉曼光谱：(A-D) 原位电化学拉曼光谱；(E-F) 拉曼特征演变幅度分析。

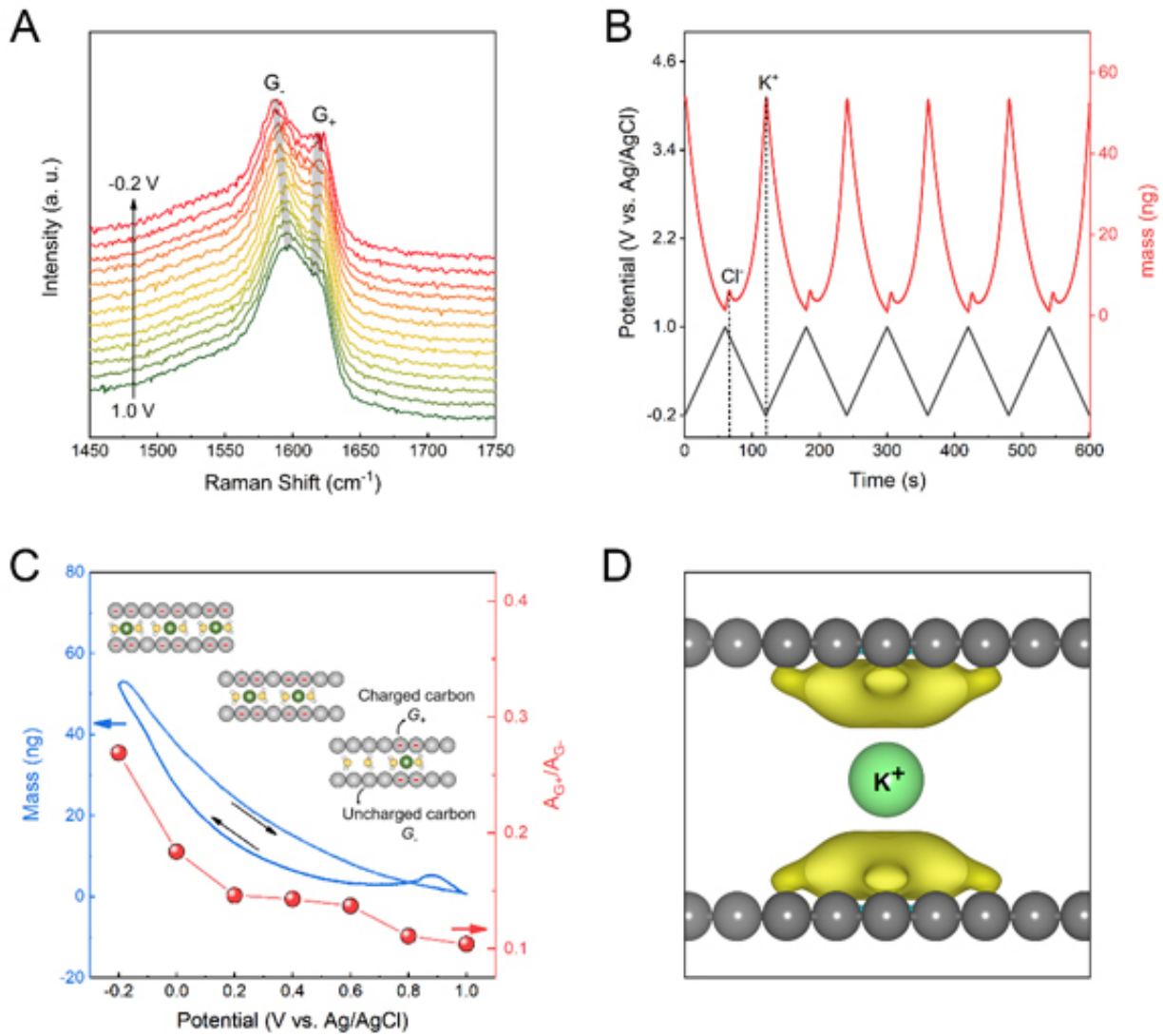


图4. 层状限域双电层电容的储能机理分析：(A) 拉曼光谱中的G峰劈裂；(B) 电化学石英晶体微天平分析；(C) 电极质量变化和拉曼特征变化的关联性；(D) DFT-RISM计算获得的图像电荷分布。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/199940.html>