

ศิริศักดิ์ สิงห์เสน : โลหะทรานซิชั่นและไนโตรเจนร่วมเจือปนวัสดุกราฟไดอาซีนเพื่อเป็นวัสดุแคโทดในลิเทียม-ซัลเฟอร์แบตเตอรี่ การศึกษาโดยวิธีเฟิร์สพริ้นซิเพิล (TRANSITION METAL AND NITROGEN CO-DOPED GRAPHDIYNE AS A CATHODE MATERIAL OF LITHIUM-SULFUR BATTERIES: A FIRST-PRINCIPLES STUDY)

อาจารย์ที่ปรึกษา : ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ดร.สุวิทย์ สุธีรากุล, 113 หน้า.

คำสำคัญ: ลิเทียม-ซัลเฟอร์แบตเตอรี่ กราฟไดอาซีน ทฤษฎีฟังก์ชันนอลความหนาแน่น เฟิร์สพริ้นซิเพิล ลิเทียมพอลิซัลไฟด์

วิทยานิพนธ์นี้ใช้การคำนวณบนพื้นฐานด้วยระเบียบวิธีฟังก์ชันนอลความหนาแน่น และการจำลองพลศาสตร์เชิงควอนตัม เพื่อศึกษาบทบาทของโลหะทรานซิชั่นและไนโตรเจนอะตอมร่วมเจือปนวัสดุกราฟไดอาซีน เพื่อเป็นวัสดุแคโทดสำหรับลิเทียม-ซัลเฟอร์แบตเตอรี่ โดยพิจารณาสมบัติที่สำคัญ ได้แก่ การก่อเกิดของการเจือ ความสามารถในการดูดซับ สมบัติเชิงอิเล็กทรอนิกส์ การลดผลกระทบชัลเทิล (Shuttle effect) ความสามารถในการละลาย และการย่อยสลายของโมเลกุล จากผลการคำนวณแสดงให้เห็นว่ากราฟไดอาซีนที่เจือโลหะทรานซิชั่นร่วมกับไนโตรเจนเป็นสารตัวนำไฟฟ้า ที่มีความเสถียรเชิงอุณหพลศาสตร์ ซึ่งสนับสนุนการเกิดของปฏิกิริยาระหว่างการอัดและการคายประจุได้ การดูดซับของโมเลกุลซัลเฟอร์และลิเทียมพอลิซัลไฟด์บนกราฟไดอาซีนเป็นแรงวนเตอร์วาลส์อย่างอ่อน ก่อให้เกิดผลการทบทกลับได้ ในขณะที่การดูดซับของโมเลกุลดังกล่าวบนแผ่นเจือปนเป็นการดูดซับทางเคมีที่แข็งแรง ซึ่งช่วยลดการเกิดผลกระทบชัลเทิลได้เป็นอย่างดี เพราะมีแรงดูดซับระหว่างโมเลกุลกับแผ่นมากกว่าแรงดึงดูดกับโมเลกุลอิเล็กโทรไลต์ โดยโมเลกุลพอลิซัลไฟต์ในสายละลายอิเล็กโทรไลต์มีความสามารถในการละลายสูง โดยเฉพาะในสารละลายไดเมทอกซีอีเทน (Dimethoxy ethane) นอกจากนี้การสลายตัวของโมเลกุลพอลิซัลไฟต์บนแผ่นเจือปนเกิดขึ้นได้ดีกว่าบนแผ่นกราฟไดอาซีนบริสุทธิ์ โดยการลดลงของพลังงานก่อกัมมันต์ ส่งผลให้สนับสนุนการเร่งปฏิกิริยารีดอกซ์ในกระบวนการอัดและคายประจุ ดังนั้น วิทยานิพนธ์ฉบับนี้อาจพูดเป็นนัยได้ว่าโลหะทรานซิชั่นและไนโตรเจนอะตอมร่วมเจือปนวัสดุกราฟไดอาซีนเหมาะสมสำหรับประยุกต์ใช้เพื่อเป็นวัสดุแคโทดชนิดใหม่ในลิเทียม-ซัลเฟอร์แบตเตอรี่

สาขาวิชาฟิสิกส์
ปีการศึกษา 2565



ลายมือชื่อนักศึกษา ศิริศักดิ์
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา สุวิทย์ สุธีรากุล
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม พริ้ง

SIRISAK SINGSEN : TRANSITION METAL AND NITROGEN CO-DOPED GRAPHDIYNE
AS A CATHODE MATERIAL OF LITHIUM-SULFUR BATTERIES : A FIRST-PRINCIPLES
STUDY. THESIS ADVISOR : ASST. PROF. SUWIT SUTHIRAKUN, Ph.D. 113 PP.

Keywords: lithium-sulfur batteries, graphdiyne material, density functional theory, first principles method, polysulfide

In this thesis, we carried out first-principles calculations to study the synergetic role of a transition metal and N co-doped graphdiyne ($TMN_x@GDY$, $TM = Fe$ or Co) as a host cathode material in lithium-sulfur (Li-S) batteries. The fundamental properties were explored, including the formation of doping, adsorbability, electronic properties, suppression and solvation of lithium polysulfide (Li_2S_x), and catalytic Li_2S_x decomposition. Our computations reveal that a doped substrate is thermodynamically stable. Their metallic structures promote redox activities during the charge/discharge process. The adsorption strengths between S_8/Li_2S_x molecules and pristine GDY are weak as Van der Waals interactions, leading to Li_2S_x shuttling easily. The adsorbability is substantially improved upon adsorption on the doped substrates where the molecules prefer to form $TM-S$ and $Li-N$ bonding. Moreover, the adsorption strength between Li_2S_x and the doped substrates is stronger than the binding interaction toward electrolyte molecules, suggesting a good suppression of the shuttle effect. The Li_2S_x molecules show high solubility in the presence of an electrolyte environment, especially DME solvent, leading to promote Li_2S_x dissolution. In addition, the energy barriers of the Li_2S_x decomposition on the doped substrates are reduced when compared to those on pristine GDY, resulting in accelerated phase transformation. Our thesis may suggest that the doped substrate is a promising candidate as a novel host cathode material in Li-S batteries.

School of Physics
Academic Year 2022

Student's Signature 
Advisor's Signature 
Co-Advisor's Signature 