

## Reduzierte Graphenoxide und deren Metalloxid-basierte Nanokomposite zur Anwendung in der Energiespeicherung

### Abstract

Its high potential for numerous future applications triggered the outstanding scientific impact graphene rapidly gained since its discovery. However, as it is still a long way to go for spincomputers and thermal-vision contact lenses, simple processes are needed that initiate an instant benefit from graphenes remarkable properties. Lithium-ion-batteries could be such beneficiaries as the mechanical strength and electrical conductivity of graphene could help mastering the challenges they are facing due to the rapid technological development.

This work attempts to help merging both areas by investigating simple and scalable methods for the production of reduced graphene oxide based composites as possible anode materials for LIBs. Therefore, graphene oxide (GO) has been synthesized and was further processed by liquid as well as gas phase approaches to obtain different rGO-metal oxide nanocomposites. The reduction of GO with different  $M^{2+}$ -ions ( $M = \text{Sn}, \text{Fe}, \text{Co}$ ) in aqueous solution played a keyrole in the material synthesis and was investigated in detail by means of X-ray photoelectron spectroscopy. As a result, various rGO-MO<sub>x</sub> composite materials could be obtained and applied as negative electrodes in lithium-ion-batteries. In doing so, the positive effect of the one-step reduction and composite formation on the electrode performance could be demonstrated.

In addition, shaping techniques where utilized to combine the benefits of conductive and flexible carbon composite structures with the concept of a self-supporting electrode design. The incorporation of nitrogen and its effects on the electronic structure of the graphene sheets was employed to enhance the battery performance.

By doing so, the following major points were adressed:

- Metal-ion induced GO-reduction and *in situ* composite formation
- Self-assembly of graphene oxide flakes for the production of free-standing graphene oxide thin films
- Investigation of nitrogen doping to enhance electrical properties
- Incorporation of nanostructured oxide materials to form free-standing composite films

## Kurzzusammenfassung

Das hohe Potential für zahlreiche zukünftige Anwendungen ist Grundlage der unvergleichlichen wissenschaftlichen Aufmerksamkeit, die Graphen bereits kurz nach seiner Entdeckung auf sich gezogen hat. Jedoch liegen Spincomputer und Thermalsicht-Kontaklinsen noch in ferner Zukunft, weshalb Prozesse entwickelt werden müssen um von den bemerkenswerten Graphen-Eigenschaften schon heute profitieren zu können. Lithium-Ionen-Batterien (LIBn) könnten einen potentiellen Nutznießer zeitnaher Graphen-Anwendungen darstellen, da die mechanische Stabilität und elektrische Leitfähigkeit der Kohlenstoffmodifikation helfen könnten, derzeitige Herausforderungen aufgrund der rasanten technologischen Entwicklung zu meistern.

Durch die Untersuchung einfacher und aufskalierbarer Methoden zur Herstellung Graphen- bzw. rGO-basierter Kompositmaterialien für den möglichen Einsatz als Anodenmaterial, soll die vorliegende Arbeit helfen beide Themenschwerpunkte zu vereinen. Hierzu wurde Graphenoxid (GO) dargestellt und im Weiteren mittels Lösungs- sowie Gasphasen-basierter Prozessschritte zu unterschiedlichen Kompositmaterialien aus reduziertem Graphenoxid und Metalloxid-Nanostrukturen umgesetzt. Die Graphenoxid-Reduktion mit verschiedenen M<sup>2+</sup>-Ionen (M = Sn, Fe, Co) stellte dabei eine Schlüsselrolle der Materialsynthese dar und wurde eingehend mittels Röntgen-Photoelektronen-Spektroskopie untersucht. Auf diese Weise konnten unterschiedliche rGO-MO<sub>x</sub>-Kompositmaterialien hergestellt und erfolgreich als negative Elektroden in Lithium-Ionen-Batterien eingesetzt werden. So konnte der positive Effekt der simultanen Reduktion und Kompositbildung auf die Elektrodeneigenschaften demonstriert werden.

Darüber hinaus wurden formgebende Methoden angewendet, um die Vorzüge einer leitfähigen, flexiblen Kohlenstoff-Komposit-Struktur mit dem Konzept selbsttragender Elektrodenanordnungen zu kombinieren. Der Einbau von Stickstoff und die daraus resultierenden Auswirkungen auf die Graphen-Bandstruktur wurden darüber hinaus genutzt, um die elektrochemischen Eigenschaften weiter zu verbessern.

Dabei wurden die folgenden Themenschwerpunkte bearbeitet:

- Metal-Ionen-assistierte GO-Reduktion und *in situ* Komposit-Bildung
- Selbstanordnung dispergierter Graphenoxid-Flakes zur Herstellung freistehender GO-Filmstrukturen
- Untersuchung der Stickstoff-Dotierung als Möglichkeit zur Verbesserung der elektrischen Eigenschaften
- Implementierung einer nanostrukturierten Oxidphase, in die freistehenden Filmstrukturen, zur Herstellung freistehender Kompositfilme