

# ELEKTRILISE KAKSIKKIHI KONDENSAATORITE JA SÜSINIKMATERJALIDE UURINGUD TARTUS 1997–2006

*Enn Lust, Alar Jänes*

Tartu Ülikooli füüsikalise keemia instituut

Üheks tänapäeva industriaalühiskonna väga pakulist lahendamist vajavaks probleemiks on kõrg-efektiivse loodussõbraliku energiamajanduse, s.o energiatootmise ja säilitamise süsteemide väljarendamine. Tänapäeva energeetika peab olema oluliselt efektiivsem kui seni Eestis kasutuselolev põlevkivienergeetika, millel on oluline roll selles, et Eesti on Euroopa Liidu “must lammas” oma ülimaldala energeetilise efektiivsusega (s.o kasutatud energiahulgalt toodangu kohta). Seni on Eestis väga visalt juurdunud elektrienergia ja soojusenergia koostootmise süsteemid, mille energeetiline efektiivsus on oluliselt suurem kui Carnot’ termodünaamilisel tsükli põhinevate soojus- ja elektrienergia efektiivsus. Nobeli preemia laureaat W. Ostwald näitas juba 1896. aastal, et elektrokeemiliste kütuseelementide teoreetiline kasutegur on oluliselt suurem kui Carnot’ soojusmasina kasutegur. Väga suure elektrilise kasuteguriga energia salvestamise seadeldis on elektrilise kaksikkihi kondensaator (EKKK) [Arulepp jt, 2004; Eikerling, 2005; Jänes jt, 2004abc; Leis jt, 2001; Lust jt, 2003, 2004abc], kus nii positiivse kui ka negatiivse elektrodina kasutatakse ülisuure eripinnaga nano-mesopoorset süsinikku (tabel 1), mis saadakse väga erinevaid lähteaineid ja valmistamismeetodeid kasutades [Arulepp jt, 2004, 2006; Jänes jt, 2004abc, 2006; Jänes, Lust, 2005, 2006ab; Leis jt, 2001, 2006; Lust jt, 2003, 2004abc]. USAs, Jaapanis, Šveitsis jm uuritakse ülisuure elektrimahtuvusega elektrokeemiliste kondensaatorite kasutamise võimalusi tsükliiselt töötavate fotoelektriliste ja tuuleturbiinide ning hüdroelektrienergia energiasalvestitena. Samuti on EKKKd väga efektiivsed impulss-vooluallikad, mille elektriline kasutegur on 94–97% ning kus piikvoolutugevus võib ulatuda tuhandettesse ampritesse ning seda 10 ja enama sekundi jooksul sõl-

tuvalt kondensaatori mahtuvusest ja muudest tehnilistest detailidest. Sellest tulenevalt on autofirmade (Ford, Toyota Motors, BMW jne) konstruktorite ettekujutuse kohaselt EKKKd asendamatud efektiivsete elektriautode, busside ja vedurite konstrueerimisel, kus neid lisaks stabiilses režiimis töötavale kütuseelemendile või liitium-ioonpatareile kasutatakse energiaimpulsside saamiseks kiirendusel. Tänapäeva tehnoloogia võimaldab pidurdamisel genereeritavat elektrienergiat kasutada EKKK taaslaadimiseks.

Elektrilise kaksikkihi kondensaatorid jaotuvad kaheks suureks grupiks: vesilahuse- ja mittevesilahuse-kondensaatorid, sõltuvalt nende maksimaalse potentsiaalierinevuse väärtusest positiivselt ja negatiivselt laetud elektrodide vahel ( $\Delta U$ ). Kahjuks on vee lagunemise termodünaamiline ülepinge (1,23 V) kaks kuni neli korda väiksem kui mõningate orgaaniliste solventide lagunemise ülepinge (4–5 V) ning seega on vee baasil valmistatud EKKK  $\Delta U \leq 0,8$  V, kuid atsetonitriili (AN) või propüleenkarbonaadi (PC) baasil valmistatud EKKK  $\Delta U = 2,7\text{--}3,4$  V, sõltudes oluliselt vee (lisandi) kontsentratsioonist EKKKs [Arulepp jt, 2004; Eikerling, 2005; Jänes jt, 2004abc, 2006; Jänes, Lust, 2005, 2006ab; Leis jt, 2001; Lust jt, 2003, 2004abc].

Tartu Ülikooli füüsikalise keemia instituudis (TÜ FKFE) alustati süsinikmaterjalide (klaassüsinik, grafiit, kõrgorienteeritud grafiit, poorne ning kare klaassüsinik) elektrokeemilise käitumise uurimist 1991. aastal, kasutades nii vee kui ka AN baasil valmistatud erinevaid elektrolüüte. 1997. aastal tuli ahvatlev pakkumine asuda uurima nanopoorsete süsinikmaterjalide omadusi koostöös ettevõttega AS Tartu Tehnoloogiad, kellega edukas koostöö jätkub tänaseni.

Tabel 1

## Selekteeritud süsinikmaterjalide gaasifaasi karakteristikud

Parameeter	Lähtekarbiid				
	$\alpha$ -SiC	TiC	Mo <sub>2</sub> C	B <sub>4</sub> C	Al <sub>4</sub> C <sub>3</sub>
Lähtekarbiidi kristallograafiline struktuur	romboeedriline	kuubiline	heksagonaalne	romboeedriline	romboeedriline
$S_a / \text{m}^2\text{g}^{-1}$	1085	1505	1490	1525	1470
$S_m / \text{m}^2\text{g}^{-1}$	1030	1205	0	930	1130
$V_m / \text{cm}^3\text{g}^{-1}$	0,46	0,60	0	0,43	0,57
$V_k / \text{cm}^3\text{g}^{-1}$	0,49	0,75	1,50	0,99	0,74
$D_{\text{NLDFT}} / \text{nm}$	~0,7	~0,8	~4,0	~1,3	~0,8

$S_a$  – Brunauer-Emmett-Telleri meetodil (BET) määratud eripind

$S_m$  – nanopooride eripind

$V_m$  – nanopooride ruumala

$V_k$  – pooride koguruumala

$D_{\text{NLDFT}}$  – NLDFT meetodil (*non-local density functional theory*) arvatud keskmine pooridiameeter

## NANOPOORSE SÜSINIKU VALMISTAMINE JA ELEKTROKEEMILINE ISELOOMUSTAMINE

AS Tartu Tehnoloogiad ja TÜ FKFE koostöö tulemusena töötati välja meetodika nanopoorsete materjalide elektrokeemiliste uuringute läbiviimiseks ning esimesed olulised tulemused saadi 1999. aastal (Gunnar Nurk, Alar Jänes, Mati Arulepp jt). Sellest ajast alates on uuritud väga palju erineva poorijaotuse ja eripinnaga süsinikmaterjale, mis on sünteesitud Anti Perksoni, Jaan Leisi, M. Arulepa, Marko Läti jt poolt). ASs Tartu Tehnoloogiad on uuritud põhiliselt binaarsetest karbiididest kloreerimisel saadud nn skeletonsüsinikmaterjale, mis on väga kitsa poorijaotusfunktsiooni maksimumiga (joonis 1) ja ülisuure eripinnaga (kuni 2000 m<sup>2</sup>/g). Poorijaotusfunktsiooni maksimumi asukohta on võimalik muuta nii diameetri kui ka nanopoori ruumala järgi, kasutades erinevaid lähtekarbiide (TiC, Mo<sub>2</sub>C, B<sub>4</sub>C, Al<sub>4</sub>C<sub>3</sub>,  $\alpha$ -SiC), aga ka erinevaid süsiniku järeltöötlemise tingimusi (töötlemine veeauruga, CO-ga jne). Samuti on oluline sünteesitemperatuur, sest kõrgemal kui 1100°C hakkab toimuma amorfse süsiniku grafitiseeru-

mine, mis vähendab eripinda. Samuti on uuritud nanopoorse süsiniku sünteesimise võimalusi TiC ja TiO<sub>2</sub> segudest, et vähendada üliväikeste nanopooride osa saadavas süsinikus [Arulepp jt, 2006; Leis jt, 2006]. Klorineerimismeetodil saadakse üliheade elektrokeemiliste omadustega nanopoorset süsinikku (tabel 2, 30% paremad kui traditsioonilistel meetoditel valmistatud), kuid kahjuks on lähtematerjalide hinnad väga kõrged ja klooriga töötamine tervistkahjustav ning keskkonnohulik [Arulepp jt, 2004; Eikerling, 2005; Jänes jt, 2004abc; Leis jt, 2001; Lust jt, 2003, 2004abc]. Seepärast on TÜ FKFEs alates 2002. aastast uuritud teisi meetodeid ja lähteaineid nanopoorse süsiniku tootmiseks. Põhiliselt on selleks kasutatud nanokiudpolümeere, aga ka maailmaturult ostetud erinevaid süsinikkangaid ja nanopoorse süsiniku pulbreid, mida on täiendavalt aktiveeritud kas veeauru, süsinikoksiidi või muude reagentidega. Joonisel 2 on toodud diferentsiaalse pooriruumala sõltuvus pooridiameetrist, millelt on nä-

ha, et nanopoorse süsiniku veeauruga töötlemine tõstab oluliselt mesopooride ( $d > 2,0$  nm) osakaalu ning vähendab nanopooride ( $d < 2,0$  nm) ruumala ja tõstab materjalis ioonide Gibbsi adsorptsiooni ehk elektrilist mahtuvust. Saadud on karbiidsetele süsinikele sarnase piirilise mahtuvusega  $C_s \sim 120$  F/g

nanopoorseid süsinikmaterjale [Jänes jt, 2006], mis on palju odavamad kui skeletonsüsinikud. Elektrijuhtivuse parandamiseks kaetakse õhukese kihiline süsinikelektrood ühelt poolt ülipuhta vaakumaurustatud Al-kihiga, millele omakorda keevitatakse Ar-atmosfääris üliõhuke Al-plekk.

Tabel 2

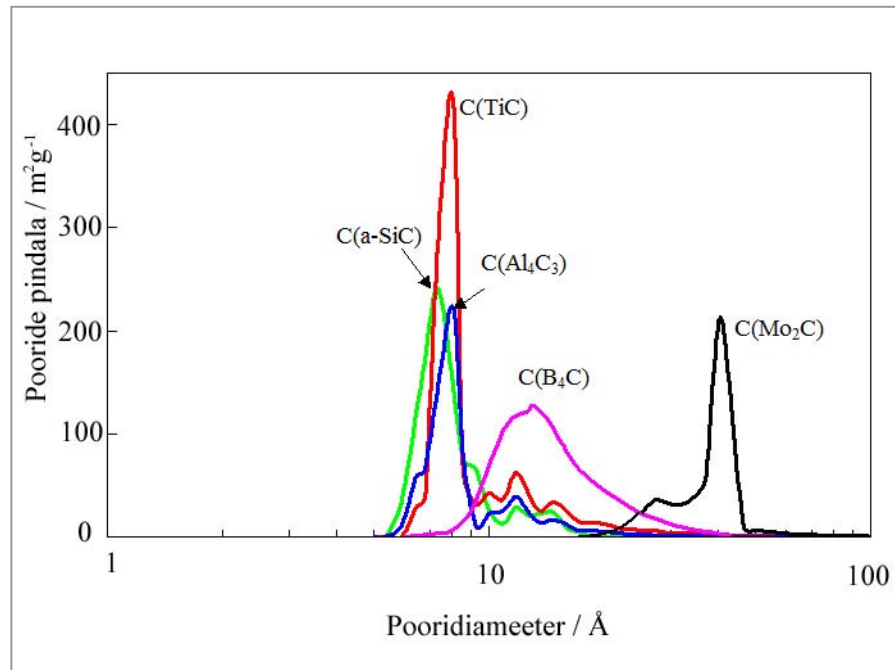
Karbiidset päritolu nanopoorsete süsinikmaterjalide elektrokeemilised karakteristikud 1M (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub>CH<sub>3</sub>NBF<sub>4</sub> atsetonitriili lahuses

Nanopoorne süsinik	$E_{\min}/V$ vs SCE	$C_s/F\text{ cm}^{-2}$	$C_s/F\text{ g}^{-1}$	$C_s/F\text{ cm}^{-3}$	$f_{\max}/\text{Hz}$
C(TiC)	0,31±0,02	0,69±0,05	98,3±0,8	62,2±0,5	1990
C(α-SiC)	0,30±0,02	0,14±0,03	16,3±0,4	12,8±0,3	630
C(Mo <sub>2</sub> C)	0,31±0,02	0,63±0,05	120,0±0,8	52,0±0,5	790
C(Al <sub>4</sub> C <sub>3</sub> )	0,30±0,02	0,60±0,05	82,3±0,5	53,0±0,5	1255
C(B <sub>4</sub> C)	0,24±0,02	0,47±0,04	70,9±0,5	41,8±0,4	1255

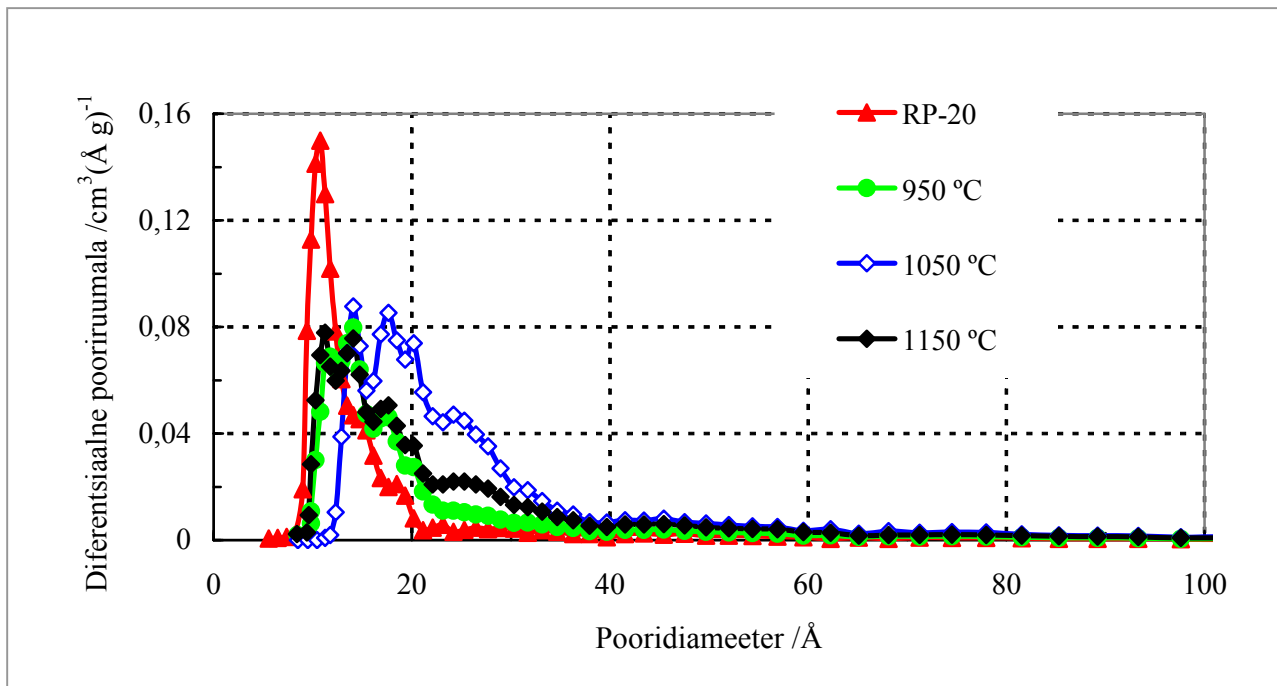
$E_{\min}$  – diferentsiaalmahtuvuse potentsiaalset sõltuvuse kõverate miinimumi potentsiaal küllastatud kalomelektroodi suhtes (SCE)

$C_s$  – järjestikune diferentsiaalmahtuvus  $E = -1.4$  V (vs SCE) ja  $f = 10$  mHz juures

$f_{\max}$  – karakterne sagedus



Joonis 1. Binaarsetest karbiididest kloreerimise teel valmistatud süsinikmaterjalide poori- jaotuse sõltuvus lähtematerjalist.



Joonis 2.

Eelnevalt aktiveerimata ja erinevatel temperatuuridel (toodud joonisel) veeauruga aktiveeritud nanopoorse süsiniku RP-20 diferentsiaalne poorijaotus.

## NANOPOORSETE SÜSINIKELEKTROODIDE JA EKKKde IDEAALSE POLARISEERITAVUSE ALA LAIENDAMINE

Teiseks väga oluliseks probleemiks on olnud vajadus suurendada süsinikelektroodide ja EKKKde ideaalse polariseeritavuse ala  $\Delta U$  (s.o rakupotentiaali ulatust), kuna nii EKKKde võimsustihedus  $P$  kui ka energiatihedus  $E$  sõltub paraboliselt  $\Delta U$ -st ( $E = f(\Delta U^2)$  ja  $P = f(\Delta U^2)$ ).

Põhilised tegurid, mis määravad  $\Delta U$ , on solvendi ja elektrolüüdi ning nanopoorse süsinikmaterjali veesisaldus, aga ka elektrokeemiliselt aktiivsete gaaside ( $O_2$ ,  $H_2$ ,  $SO_x$ ,  $NO_x$ ,  $H_2S$ ) absorptsioon/adsorptsioon nanopoorides või orgaaniliste ühendite (aldehüüdid, alkoholid, ketoonid jne) ja ioonsete lisandite ( $Li^+$ ,  $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $F^-$ ,  $HSO_4^-$ ) esinemine elektrolüüdis. Seepärast teostatakse kõik eksperimentaalsed uuringud TÜ FKFEs hermeetilises

katsekapis, kus  $O_2$ , veeauru,  $SO_x$  ja  $NO_x$  sisaldus on viidud alla 1 ppm. Kasutatakse pikaajaliselt vaakumkuivatuskapis kuivatatud süsinikelektroode ning molekulaarsõeltega A4 täiendavalt kuivatatud ülikuiivi solvante. Elektrolüütidena kasutatakse veevabu tetraalküülammoonium-tetrafluoro-boraaite [Arulepp jt, 2004, 2006; Eikerling, 2005; Jänes jt, 2004abc, 2006; Jänes, Lust, 2005, 2006ab; Leis jt, 2001, 2006; Lust jt, 2003, 2004abc]. TÜ FKFEs loodud tingimustes on saavutatud süsinikelektroodide jaoks  $\Delta U \approx 3,6$  V [Jänes jt, 2006; Jänes, Lust, 2005, 2006ab], mis on ligikaudu võrdne kahekordse energiatiheduse juurdekasvuga, võrreldes maailmas seni laialdaselt saavutatud  $\Delta U = 2,6$  V-ga [Arulepp jt, 2004; Jänes jt, 2004abc; Leis jt, 2001; Lust jt, 2003, 2004abc].

## SOLVENTIDE MÕJU EKKK ÜHIKRAKU OMADUSTELE

Et asendada mürgine atsetonitriil (AN) loodussõbralikumate solventidega (etüleenkarbonaat (EC), etüülmetüülkarbonaat (EMC), dimetüülkarbonaat (DMC), propüleenkarbonaat (PC), etüülatsetaat (EA), metüülatsetaat (MA), metüülformaat (MF)) uuriti kaheelektroodsetes ühikrakkudes binaarsete, ternaarsete ja kvaternaarsete solventide süsteemide ja elektrolüütide  $(C_2H_5)_3C_4H_9NBF_4$ ,  $(C_2H_5)_4NBF_4$ ,  $(C_2H_5)_3CH_3NBF_4$ ,  $(CH_3)_3C_2H_5NBF_4$  baasil valmistatud lahuste mõju elektrilise kaksikkihi kondensaatorite ühikrakkude omadustele. Leiti, et nii mitmedki solventide segude baasil valmistatud ühikrakud on ideaalselt polariseeritavad väga laias potentsiaalide vahemikus ( $\Delta U$  kuni 3,5 V), mis lubab järeldada, et AN asendamine vähemmürgiste ja loodussõbralikumate elektrolüütidega on võimalik [Jänes, Lust, 2005, 2006ab]. Leiti, et suurim madalsageduslik piiriline elektriline mahtuvus on etüleenkarbonaadi (EC), dimetüülkarbonaadi (DMC) ja etüülatsetaadi (EA) ekvimolekulaarsel segul ( $C_s = 125 \text{ F}\cdot\text{g}^{-1}$ ), aga samuti EC ja EA ekvimolekulaarse segu baasil valmistatud ühikrakul. Kasutades impedantspektroskoopia andmeid, määrati kindlaks ühikrakkude laadimise ja tühjenemise ajakonstandid  $\tau_R$ , mis olid küll veidi suuremad kui AN baasil valmistatud ühikrakkudel, kuid oluliselt lühemad kui  $\gamma$ -butürolaktooni või propüleenkarbonaadi baasil valmistatud EKKKdel, mida seni põhiliselt laiatarbe EKKKdes kasutatakse [Arulepp jt, 2004; Eikerling, 2005; Jänes jt, 2004abc; Jänes, Lust, 2005, 2006ab; Leis jt, 2001; Lust jt, 2003, 2004abc].

Kasutades impedantspektroskoopia andmeid EKKKde või ühikrakkude jaoks arvatati kondensaatoripatarei või ühikraaku kompleksvõimsus  $S(\omega)$  ja selle reaali- ning imaginaariosad ( $P(\omega)$  ja  $Q(\omega)$ ) vastavalt valemitele:

$$S(\omega) = P(\omega) + jQ(\omega) \quad (1)$$

Võimsuse reaalosa  $P(\omega)$  on arvatav kui

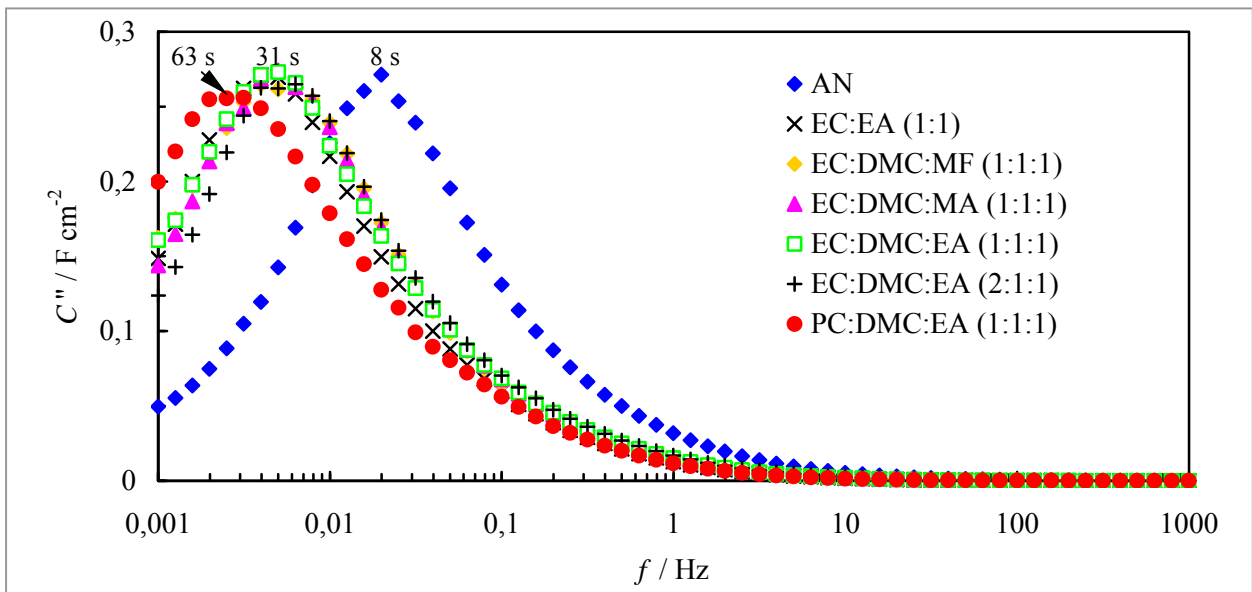
$$P(\omega) = \omega C''(\omega) |\Delta V_{\text{rms}}|^2 \quad (2)$$

ja võimsuse imaginaarosa  $Q(\omega)$  kui

$$Q(\omega) = -\omega C'(\omega) |\Delta V_{\text{rms}}|^2, \quad (3)$$

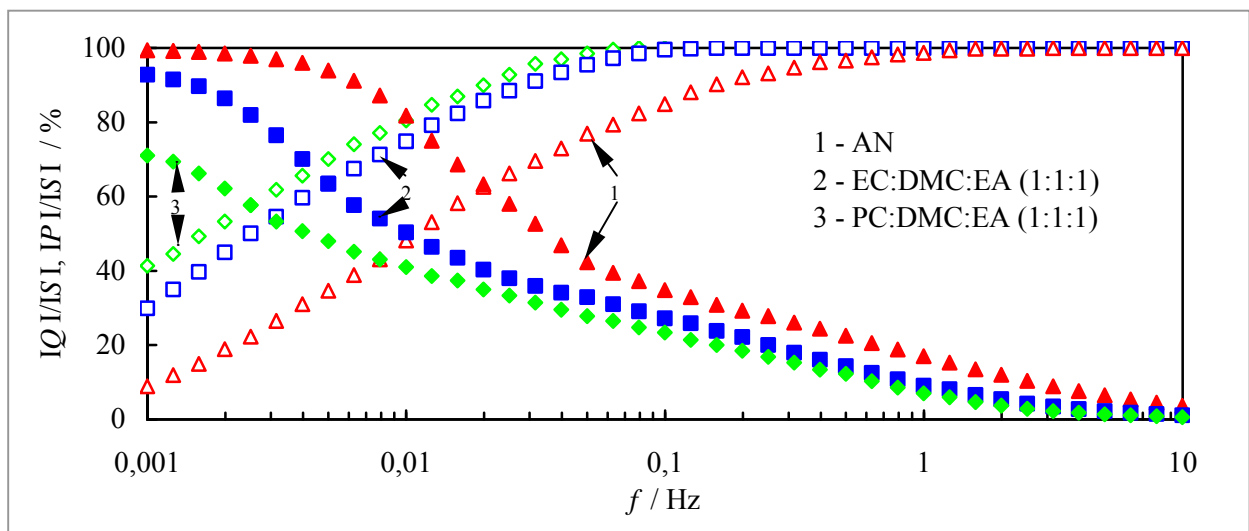
kus  $\omega = 2\pi f$  on vahelduvvoolu nurksagedus,  $|\Delta V_{\text{rms}}|^2 = \Delta V_{\text{max}}/\sqrt{2}$  (kus  $\Delta V_{\text{max}}$  on vahelduvvoolu maksimaalne amplituud), ning  $C''(\omega)$  ja  $C'(\omega)$  on mahtuvuse imaginaar- ja reaalosa (toodud joonisel 3). Kui kondensaatoripatarei käituks ideaalse mahtuvusliku süsteemina, siis oleks koguvõimsus määratud võimsuse imaginaar-komponendiga. Meie poolt uuritud EKKKde korral esinevad mõlemad komponendid (joonis 4) ning seega ostsilleeruvad kondensaatorid kahe piirjuhu vahel: käituvad takistuslike elementidena kõrgetel vahelduvvoolu sagedustel  $\omega$  ja ligilähedalt ideaalse mahtuvusliku takistina ülimaldalatel sagedustel. Vahepealsetel sagedustel käituvad EKKKd lõpmatult pika takistus-mahtuvusliku RC ahelana, mis sisaldab väga palju üksikuid RC elemente. Jooniselt 4 määratud sagedusest arvatatud iseloomulik ajakonstant  $\tau_R = (2\pi f_R)^{-1}$ , mis vastab normaliseeritud  $P(\omega)/(S)$ , logf- ja  $Q(\omega)/(S)$ , logf-sõltuvuste lõikepunktile, iseloomustab erinevate EKKKde iseloomulikke laadimisaegu, mis sõltuvad oluliselt elektrolüüdi mooljuhtivusest (põhiliselt solvendi viskoossusest), muutudes 8-st sekundist 1 M  $(C_2H_5)_3CH_3NBF_4$  + AN korral kuni 63 sekundini 1 M  $(C_2H_5)_3CH_3NBF_4$  + PC korral.

Binaarsete ja ternaarsete solventide segude baasil valmistatud ühikrakkude  $\tau_R$  väärtused varieeruvad 20–61 s, kusjuures selgub, et  $\tau_R$  määrab ära solvent, millel on suurim ajakonstandi  $\tau_R$  väärtus. Selgus, et  $\tau_R$  kasvab oluliselt, kui elektroodide aktiivkihi paksus kasvab või kui konstantse paksuse korral temperatuur alaneb [Jänes, Lust, 2005, 2006ab]. Samuti tehti kindlaks, et  $\tau_R$  kasvab, kui elektrolüüdi kontsentratsioon väheneb, st  $\tau_R$  sõltub ioonide Debye ekraneerimispikkusest lahuses. Samuti sõltub  $\tau_R$  mõnevõrra nanopooride/mesopooride keskmiste diameetrite või keskmiste ruumalade suhtest, s.o aktiivkihti moodustava süsiniku omadustest, olles pikim materjalide korral, milles on rohkem väiksema diameetriga nanopore. Seega on massiülekanne nanopoorides aeglane ja selleks, et tõsta võimsustihedust konstantse energiatiheduse juures, tuleb osa nanopore muuta



Joonis 3.

Nanopoorse süsinikkanga AUVM ( $S_a = 1500 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ ,  $d_{\text{NLDFT}} = 1,42 \text{ nm}$ ) baasil valmistatud ühikraku mahtuvuse imaginaarosa sõltuvus vahelduvvoolu sagedusest 1 M  $(\text{C}_2\text{H}_5)_3\text{CH}_3\text{NBF}_4$  lahustes erinevate solventide segudes (toodud joonisel) ( $\Delta U = 3 \text{ V}$ ,  $25^\circ\text{C}$ ).



Joonis 4.

Nanopoorse süsinikkanga AUVM ( $S_a = 1500 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ ,  $d_{\text{NLDFT}} = 1,42 \text{ nm}$ ) baasil valmistatud ühikraku normaliseeritud aktiivvõimsuse  $|P|/|S|$  (täidetud märgid) ja reaktiivvõimsuse  $|Q|/|S|$  (tühjad märgid) sõltuvused vahelduvvoolu sagedusest 1 M  $(\text{C}_2\text{H}_5)_3\text{CH}_3\text{NBF}_4$  lahustes erinevate solventide segudes (toodud joonisel) ( $25^\circ\text{C}$ ).

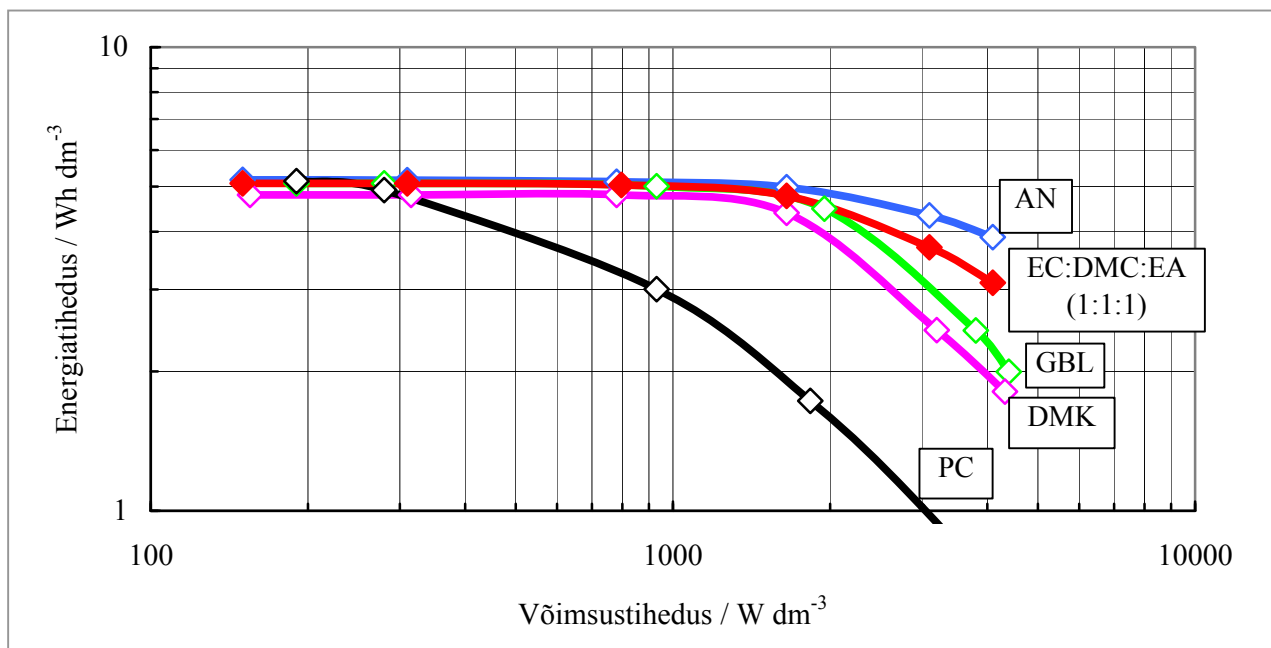
mesopoorideks, nii et summaarne mahtuvus ei väheneks (s.t optimeerida poride jaotusfunktsiooni süsinikmaterjalis). Seda, et EKKKde materjal on seni halvasti optimeeritud, näitavad mudelarvutused, mis põhinevad erinevatel empiirilistel, aga ka Eikerlingi, Kornyshevi ja Lusti poolt väljatöötatud nn nano/mesopoorse süsinikmaterjali hierarhilisel mudelil [Eikerling, 2005]. Sellest mudelist

tuleneb, et kaasajal osatakse elektrilaengu salvestamiseks (s.o ionide adsorptsiooniks) efektiivselt ära kasutada ainult 10–15% gaasifaasis aktiivsest eripinnast. Ülejäänud nanopoorid on kas blokeeritud adsorbeerunud (kemosorbeerunud) solvendimolekulide poolt või on nende raadius nii väike, et osaliselt solvateeritud/desolvateeritud ionide liikumine on raskendatud.

## RAGONE’i (VÖIMSUSTIHEDUSE ENERGIATIHEDUSEST) SÕLTUVUSED

Koostöös ASga Tartu Tehnoloogiad ja California Davis’e Ülikooliga [Arulepp jt, 2004, 2006; Leis jt, 2006] uuriti nii ühikrakkude kui ka suurte EKKK patareide Ragone’i sõltuvusi, mille tüüpilisemad näited on toodud joonisel 5. Joonistelt on näha, et Ragone’i sõltuvuste kuju sõltub väga oluliselt nii elektrolüüdist (mooljuhtivusest), tempe-

ratuurist kui ka elektroodimaterjali paksusest. Elektrolüüdi viskoossuse kasvades leiab aset oluline võimsustiheduse vähenemine konstantse energiatiheduse korral. Parimaid tulemusi näitab AN ja halvimaid PC baasil valmistatud EKKK. Temperatuuri alanedes vähenevad võimsustiheduse väärtused seda kiiremini, mida viskoossem on



Joonis 5.

Energiatiheduse sõltuvus võimsustihedusest nanopoorse süsinikkanga AUVM ( $S_a = 1500 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ ,  $d_{\text{NLDFT}} = 1,42 \text{ nm}$ ) baasil valmistatud ühikraku korral, mis on täidetud 1 M  $(\text{C}_2\text{H}_5)_3\text{CH}_3\text{NBF}_4$  lahusega erineva koostisega solventides (toodud joonisel) ( $25^\circ\text{C}$ ).

elektrolüüt. Aktiivmaterjali kihi paksuse kasvades võimsustiheduse väärtused kahanevad seda kiiremini, mida viskoossem on elektrolüüt (solvent) või madalam temperatuur. Binaarsete segude (EC : EA (1 : 1) ja EC : E : EA (1 : 1 : 1) baasil (joonis 5) valmistatud EKKKd näitavad AN baasil valmistatud EKKKdele lähedasi omadusi väikeste ja keskmiste võimsus- ja energiatiheduste alas [Jänes, Lust, 2006bc]. Suurte energiatiheduste alas on need seni disainitud nanopoorsete materjalide korral valmistatud EKKKde jaoks kahjuks mõnevõrra väiksemad, mis on tingitud binaarsete

ja ternaarsete solventide segude baasil valmistatud elektrolüüdi suuremast viskoossusest kui AN ning seega väiksemast elektrolüüdi juhtivusest nano- ja mesopoorides.

Kokkuvõttes tuleb öelda, et nanopoorset süsinikmaterjalid omavad väga laialdasi rakendusvõimalusi EKKKdes, mida saab kasutada nii pika-aegsete energiasalvestitena, impulssvooluallikateks kui ka muudes elektrilistes seadmetes.

Ilmunud on üle 15 CC publikatsiooni ja kaitstud 1 doktoritöö.

## VIITED

Arulepp, M., Leis, J., Lätt, M., Miller, F., Rumma, K., Lust, E., Burke, A. F. J. 2006. The advanced carbide-derived carbon based supercapacitor. *J. Power Sources*, (accepted).

Arulepp, M., Permann, L., Leis, J., Perkson, A., Rumma, K., Jänes, A., Lust, E. 2004. Influence of the solvent properties on the characteristics of a double layer capacitor. *J. Power Sources*, 133, 320-328.

Eikerling, M., Kornyshev, A. A., Lust, E. 2005. Hierarchical model of high energy density double layer capacitor. Toward optimisation of the electrical double layer capacitor characteristics. *J. Electrochem. Soc.*, 152, E24-E33.

Jänes, A., Kurig, H., Lust, E. 2006. Characterisation of activated nanoporous carbon for supercapacitor electrode materials. *Carbon*, (accepted).

Jänes, A., Lust, E. 2005. Organic carbonate – organic ester based non-aqueous electrolytes for electrical double layer capacitors. *Electrochem. Comm.*, 7, 510-514.

Jänes, A., Lust, E. 2006a. Electrochemical characteristics of nanoporous carbide-derived carbon materials in various non-aqueous electrolyte solutions. *J. Electrochem. Soc.*, 153, A113-A116.

Jänes, A., Lust, E. 2006b. Use of organic esters as co-solvents for electrical double layer capacitors

with low temperature performance. *J. Electroanal. Chem.*, 588, 285-295.

Jänes, A., Permann, L., Arulepp, M., Lust, E. 2004a. Electrochemical characteristics of nanoporous carbide-derived carbon materials in non-aqueous electrolyte solutions. *Electrochem. Commun.*, 6, 313-318.

Jänes, A., Permann, L., Arulepp, M., Lust, E. 2004b. Voltammetric and electrochemical impedance spectroscopy studies of nanoporous carbon | 1M (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub>CH<sub>3</sub>NBF<sub>4</sub> electrolyte solution interface. *J. Electroanal. Chem.*, 569, 257-269.

Jänes, A., Permann, L., Nigu, P., Lust, E. 2004c. Influence of solvent nature on the electrochemical characteristics of nanoporous carbon | 1M (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>3</sub>CH<sub>3</sub>NBF<sub>4</sub> electrolyte solution interface. *Surface Sci.*, 560, 145-157.

Leis, J., Arulepp, M., Kuura, A., Lätt, M., Lust, E. 2006. Electrical double-layer characteristics of novel carbide-derived carbon materials. *Carbon*, 44, 2122-2129.

Leis, J., Perkson, A., Arulepp, M., Käärik, M., Svenssdon, G. 2001. Carbon nanostructures produced by chlorinating aluminium carbide. *Carbon*, 39, 2043-2048.

Lust, E., Jänes, A., Arulepp, M. 2004a. Influence of electrolyte characteristics on the electroche-

mical parameters of electrical double layer capacitors. *Solid State Electrochem.*, 8, 488-496.

Lust, E., Jänes, A., Arulepp, M. 2004b. Influence of solvent nature on the electrochemical parameters of electrical double layer capacitors. *J. Electroanal. Chem.*, 562, 33-42.

Lust, E., Jänes, A., Pärn, T., Nigu, P. 2004c. Influence of nanoporous carbon electrodes thickness on

the electrochemical characteristics of nanoporous carbon | x M (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>4</sub>NBF<sub>4</sub> acetonitrile solution. *J. Solid State Electrochem.*, 8, 224-237.

Lust, E., Nurk, G., Jänes, A., Arulepp, M., Nigu, P., Möller, P., Kallip, S., Sammelseg, V. 2003. Electrochemical properties of nanoporous carbon electrodes in various nonaqueous electrolytes. *J. Solid State Electrochem.*, 7, 91-105.