清华大学探究电解液介电常数的微观化学机制

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/14545.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

清华大学探究电解液介电常数的微观化学机制。近日，清华大学化学工程系张强、陈翔课题组采用分子动力学模拟和机器学习方法，对液态电解液介电常数这一性质及其微观化学机制进行了深入探究。相关研究成果以An atomic insight into the chemical origin and variation of dielectric constant in liquid electrolytes为题，于北京时间2021年7月5日发表于《德国应用化学》（Angewandte Chemie International Edition）上。

介电常数是电解液的重要物理化学性质之一。根据经典的静电作用模型，介电常数能够显著影响溶质和溶剂间相互作用强弱，从而调控电解液的溶剂化结构。深入理解介电常数的化学起源有助于调控微观层面的分子间相互作用和宏观层面的电解液性质，这对溶液反应、材料合成和器件构筑均具有重要意义。但电解液组分多变，实验上一一测量各种电解液的介电常数不够便捷，难以解耦各因素的影响。所以，目前的基础数据缺乏就限制了高性能电解液体系的理性设计及高通量筛选。

针对电解液体系介电常数不明确的问题，该研究团队以锂电池中常见的电解液体系为例，采用分子动力学模拟的方法，计算了不同温度和电解液组分下的介电常数，并从分子尺度对介电常数变化的化学本质和微观机制予以阐释。通过进一步结合机器学习方法，能够助力高质量电解液数据库的构建。

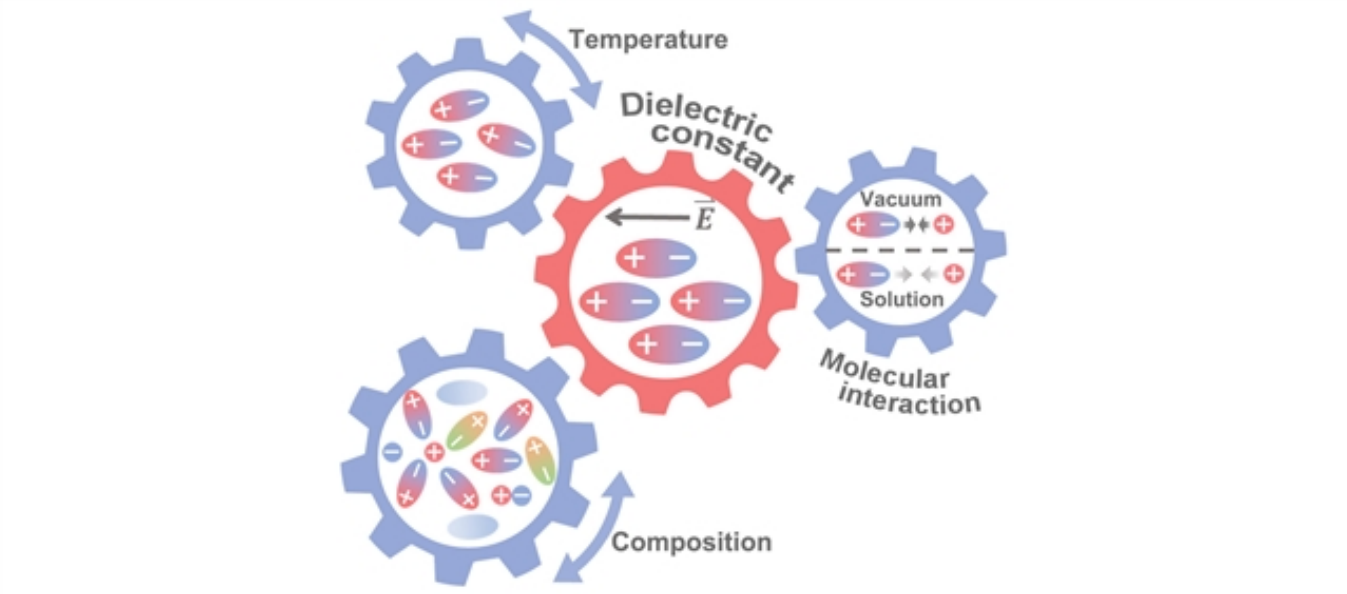


图1：温度、电解液组分、介电常数和电解液组分间相互作用的关系（研究团队供图）

高温和低温下电解液中的溶剂化和去溶剂化过程与介电常数密切相关。首先在纯溶剂体系中研究介电常数随温度变化的规律，发现随着温度的升高，分子运动加快、排布更加无序，体系偶极矩减小，从而介电常数越小。这一结果为理解全天候电池电化学行为和进一步理性设计提供基础能源化学原理。

电解液组分变化是影响介电常数的另一重要因素。从单一溶剂到混合溶剂，体系的介电常数并非总是各独立组分介电常数的线性叠加，而受到分子间或强或弱的相互作用影响呈现出类指数型和线性两种不同的变化趋势。电解液中的盐类自身具有偶极矩，能够增大介电常数；同时，盐被溶剂解离形成的溶剂化结构使得溶剂分子在离子周围呈向心分布，偶极矩相互抵消因而介电常数随之减小。这两方面效应的叠加使电解液介电常数随盐浓度的增加呈现火山型变化趋势。

作者最后还采用机器学习方法对电解液的介电常数进行了预测，展现出构建电解液数据库的可行性。

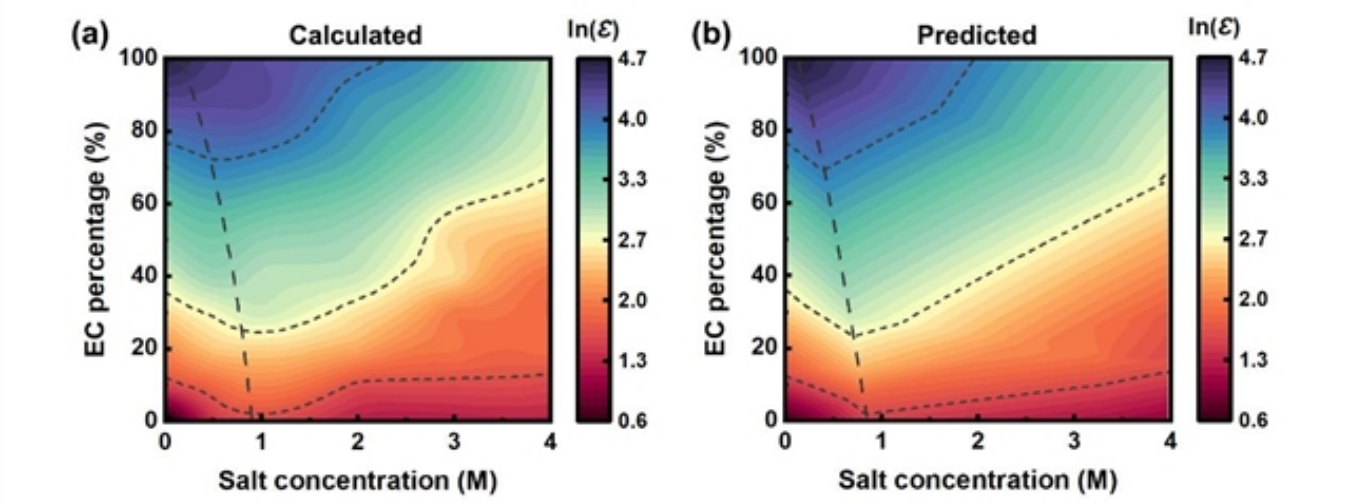


图2：不同EC比例和盐浓度下EC/DMC/LiFSI电解液的介电常数：a. 分子动力学模拟计算结果；b. 机器学习方法预测结果（研究团队供图）

该工作对液态电解液介电常数的化学本质与微观机制进行了深入探究，为高性能电解液的理性设计和高通量开发提供了可靠的理论指导。同时，该工作建立的研究方法适用于各类溶液体系，有望在其他能源化学体系取得应用。

清华大学化学工程系张强教授、陈翔博士为本文共同通讯作者，博士生姚楠为本文第一作者。（来源：科学网）

相关论文信息：https://doi.org/10.1002/anie.202107657

特别声明：本文转载仅仅是出于传播信息的需要，并不意味着代表本网站观点或证实其内容的真实性；如其他媒体、网站或个人从本网站转载使用，须保留本网站注明的“来源”，并自负版权等法律责任；作者如果不希望被转载或者联系转载稿费等事宜，请与我们接洽。
作者：张强等 来源：《德国应用化学》

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发