

INTRODUCTION

Les résultats provenant des différentes techniques de caractérisation réalisées et de l'étude expérimentale qui vise à analyser les performances électrochimiques des différents échantillons qui ont été décrits dans le chapitre précédent sont présentés et discutés de façon comparative dans ce chapitre.

Caractérisations physico-chimiques

L'analyse de la morphologie, de la texture, de la structure et de la composition chimique des différentes poudres est indispensable pour expliquer par la suite le comportement électrochimique observé.

1.1| Diffraction des Rayons X (DRX)

La structure cristalline ainsi que la taille des différents échantillons des nanopoudres tels que préparés ont été étudiées à l'aide d'un diffractomètre à rayons X (DRX, Bruker D8) avec rayonnement $K\alpha$ de cuivre de longueur d'onde $\lambda = 1,5406\text{\AA}$ dans une plage angulaire de 2θ de 10° à 70° .

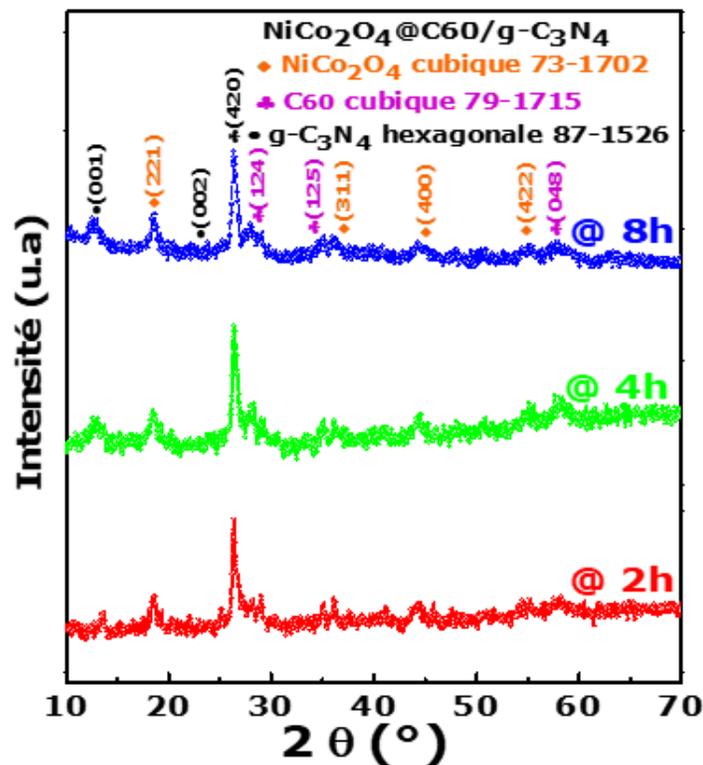


Figure 4.1| Spectres de diffraction des rayons X

Il apparaît que les trois diffractogrammes (Figure 4.1) ont des motifs similaires dont il est possible d'identifier clairement dix pics de diffraction présents dans tous les spectres qui indiquent que les nanoparticules de $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ sont de nature polycristalline.

Ainsi, quatre raies dérivées des valeurs 2θ de NiCo_2O_4 à savoir $18,3^\circ$, $36,0^\circ$, $43,8^\circ$ et $54,8^\circ$ correspondent respectivement aux indices de Miller des plans cristallographiques (221), (311), (400), et (422) et sont approuvés par la carte de base de données JCPDS n° 73-1702, selon une phase cubique. D'après les fichiers JCPDS n° 79-1715 et n° 87-1526, le C60 et le g- C_3N_4 sont indexés respectivement sur des structures cubique et hexagonales avec le C60 qui présente quatre pics à des valeurs de $27,6^\circ$, $29,1^\circ$, $35,1^\circ$ et $57,7^\circ$, qui sont attribués aux plans (420), (124), (125) et (048) et le g- C_3N_4 qui indique deux pics à $12,7^\circ$ et $26,4^\circ$ correspondant à (001) et (002). L'étroitesse des pics observés témoigne un haut degré de cristallinité des nanoparticules synthétisées.

Par conséquent, ces résultats DRX soutiennent la formation d'un composite $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$. Cependant, ils ne permettent donc pas de déterminer la nature de tous les composants. De ce fait une analyse plus approfondie a été menée par la spectroscopie Raman.

1.2| Spectroscopie Raman (SR)

Une analyse Raman a ensuite été effectuée pour vérifier l'existence des phases NiCo_2O_4 , C60 et g- C_3N_4 à l'aide d'un microscope Raman confocal WITec (WITec alpha 300 R, RAS +, Allemagne) fonctionnant avec un laser de 532 nm.

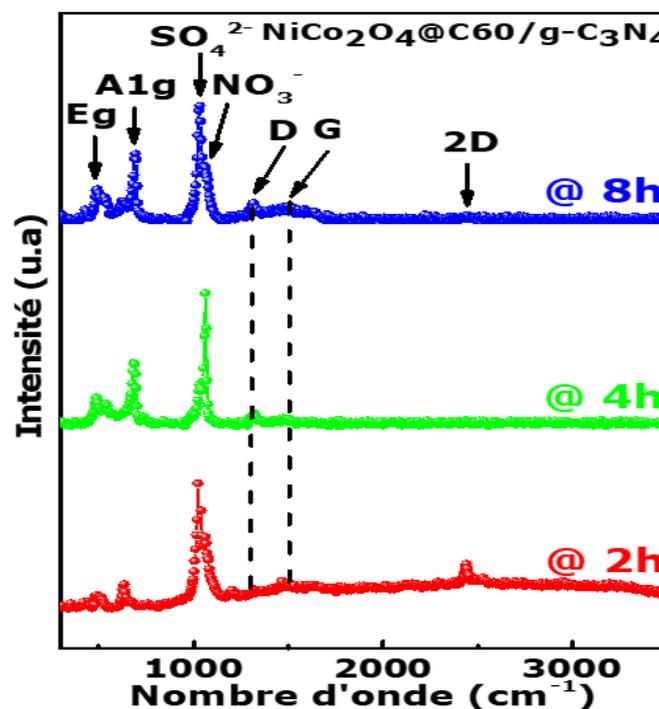


Figure 4.2| Spectres Raman

Comme présenté sur la figure 4.2, les échantillons ont le même profil de spectre.

Pour $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ @ 8h, les fréquences des modes de vibration Eg et A1g du spinelle NiCo_2O_4 sortent respectivement à $493,9$ et $686,66 \text{ cm}^{-1}$ qui sont en bon accord avec la littérature¹.

Les pics situés à 1311,34, 1516,02 et 2444,0 cm^{-1} correspondent respectivement aux bandes D, G et 2D confirmant ainsi la formation du $\text{g-C}_3\text{N}_4$ et du C60^2 . La bande G représente le mode vibrationnel symétrique E_g dans la structure graphitique et est attribuée au carbone sp^2 alors que la bande D correspond au désordre introduit par les atomes d'azote (N). Les vibrations de SO_4^{2-} sont visibles à 1032,23 cm^{-1} et NO_3^- à 1093,6 cm^{-1} .

Pour $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4 @ 4\text{h}$, on se retrouve avec presque les mêmes modes de vibration qui apparaissent à peu près aux mêmes endroits avec E_g , A1g , D, G, 2D, SO_4^{2-} et NO_3^- situés respectivement à 477,7, 686,7, 1311,4, 1501,4, 2468,9, 1056,6 et 1104,5 cm^{-1} .

De même que pour $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4 @ 2\text{h}$, les pics centrés à 485,84, 638,69, 1323,38, 1504, 2431,9, 1048,5 et 1095,49 cm^{-1} correspondent à E_g , A1g , D, G, 2D, SO_4^{2-} et NO_3^- respectivement. Cependant, la seule différence se trouve au niveau du pic 2D qui est plus intense à 2h qu'aux autres temps.

1.3| Microscopie Electronique à Balayage (MEB)

Pour mieux illustrer l'effet du temps sur la structure, l'agglomération ainsi que la morphologie, la microscopie électronique à balayage apparaît donc comme une alternative complémentaire. Pour cela un microscope électronique à balayage Ultra Plus 55 avec un potentiel de fonctionnement de 2 kV a été utilisé.

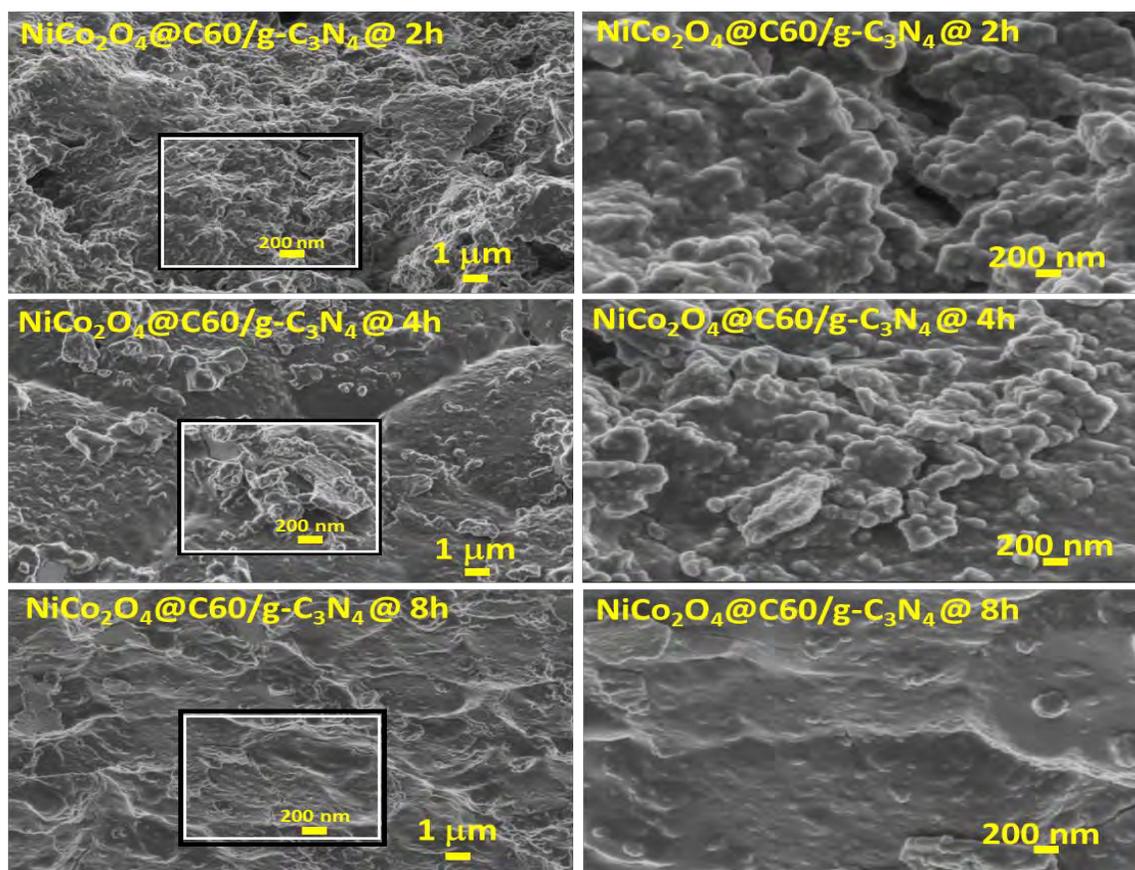


Figure 4.3| Clichés MEB des différents échantillons obtenus à faible grossissement (1 μm) et fort grossissement (200 nm)

Comme nous pouvons le voir, la variation du temps a conduit à un changement significatif de la morphologie. Notamment, à 2h l'échantillon est constitué de particules nanométriques agglomérées quasi-sphériques. Les mêmes formes sont observées à 4h à la seule différence que les nanoparticules sont hautement agglomérées et ont plus de cavités comparées aux autres, ce qui lui confère une capacité spécifique plus importante. Alors que pour $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ @ 8h, la morphologie de surface est complètement différente. Il est observé une structure dense avec une morphologie de surface presque lisse qui pourrait ne pas être favorable à l'amélioration des performances électrochimiques.

1.4| Spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie (EDX)

Une analyse plus poussée est faite par cartographie EDX pour étudier l'homogénéité de phase et l'uniformité dans la distribution des éléments.

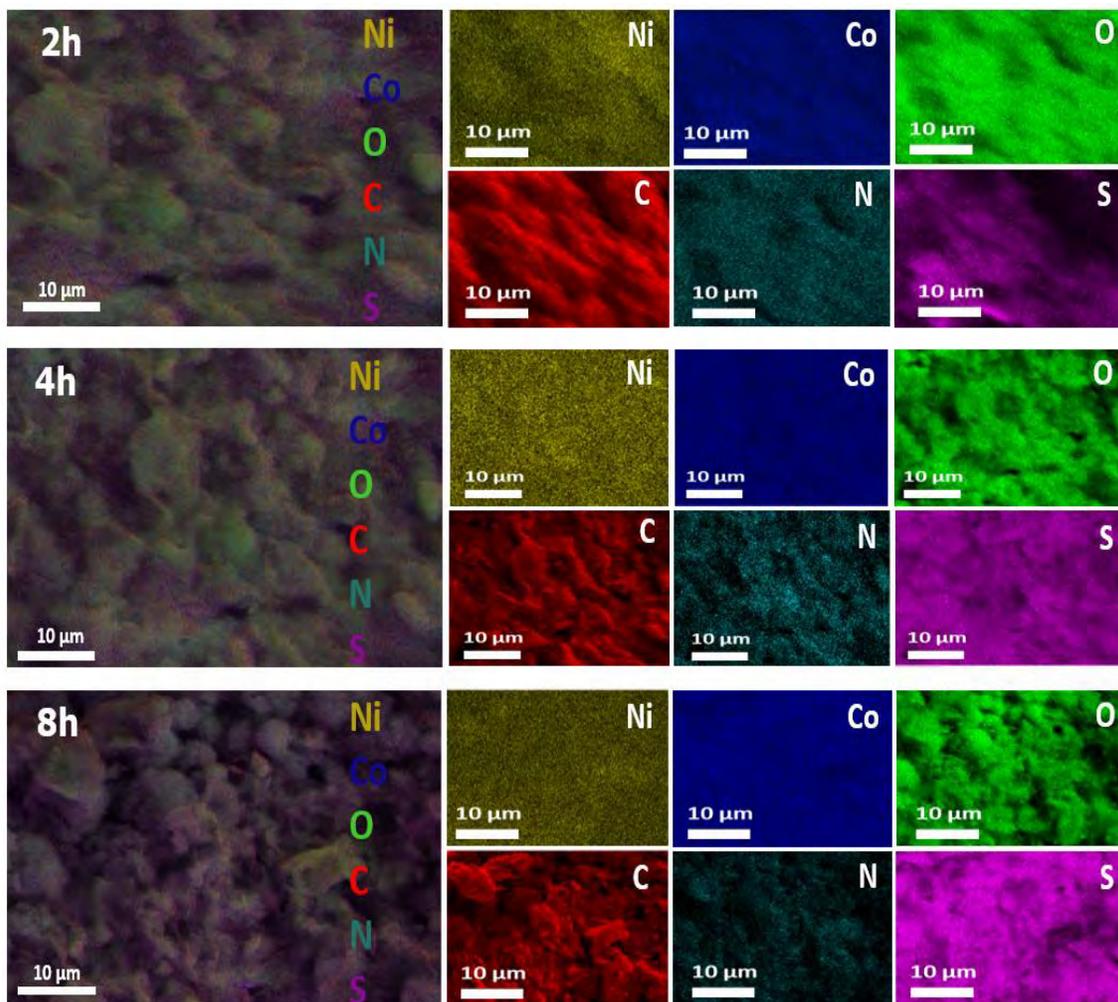


Figure 4.4| Cartographie EDX

La figure 4.4 représente les images cartographiques des composites $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$, montrant la présence d'atomes de nickel (Ni), de cobalt (Co), d'oxygène (O), de carbone (C) et d'azote (N) éléments en $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ suggérant l'incorporation réussie de

nanoparticules de carbone C60 et g-C₃N₄ dans la matrice NiCo₂O₄, mais aussi du soufre (S) provenant du précurseur sulfate de cobalt (CoSO₄). Ces atomes sont dispersés de manière homogène et uniformément répartis, pouvant conduire à des propriétés électrochimiques améliorées³. Ceci dit que la variation du temps n'influe pas sur la présence des éléments chimiques dans les échantillons.

1.5| Spectroscopie Photoélectronique aux rayons X (XPS)

La composition élémentaire ainsi que les états d'oxydation des éléments chimiques du composite NiCo₂O₄@C60/g-C₃N₄ sont obtenus par des mesures XPS.

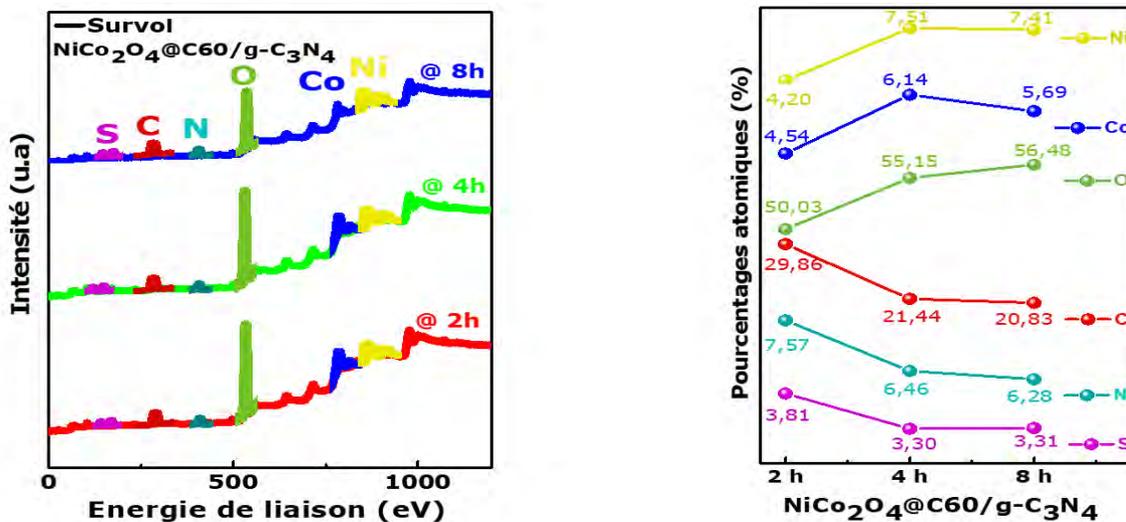


Figure 4.5| Spectre XPS de survol (a) et pourcentages atomiques (b) des différents éléments

Les spectres XPS de survol (figure 4.5 (a)) sont identiques et présentent les mêmes éléments chimiques qui sont : Ni, Co, O, C, N et S. Ces résultats sont en parfaite conformité avec ceux d'EDX. Les pourcentages atomiques (figure 4.5 (b)) ont également été estimés à partir de ces spectres. Après l'oxygène, le carbone vient avec, un pourcentage beaucoup plus élevé par rapport aux autres éléments, le carbone provient notamment du C60 et du g-C₃N₄. Les pourcentages atomiques des éléments ont également révélé la pureté des composites avec 100% de présence d'éléments requis.

Les spectres en haute résolution des orbitales des différents éléments chimiques respectifs (figure 4.6) ont des ressemblances presque parfaites pour les différentes heures de synthèse avec des énergies de liaisons sensiblement égales.

Les spectres de l'orbitale Ni 2p, présentent tous deux états d'oxydation⁴ (2+ (Ni²⁺) et 3+ (Ni³⁺)) et un satellite, issus des niveaux d'énergie Ni 2p^{3/2} et Ni 2p^{1/2}.

Les énergies de liaison autour de 855,8, 856 et 856,2 eV sont attribuées au Ni³⁺ 2p^{3/2} et celles obtenues aux valeurs 857,6, 858 et 858,2 eV sont associées au Ni²⁺ 2p^{3/2}. Tandis que celles situées aux alentours de 873,4, 873,4 et 873,6 eV sont associées au Ni³⁺ 2p^{1/2} et celles autour de 875,1, 874,9 et 875,8 eV sont attribuées au Ni²⁺ 2p^{1/2}. Les pics satellites sont présents aux niveaux d'énergie 861,5, 861,7 et 861,7 eV pour 2p^{3/2} et autour de 880,3, 880,1 et 879,4 pour 2p^{1/2} eV⁵ respectivement pour 2h 4h et 8h.

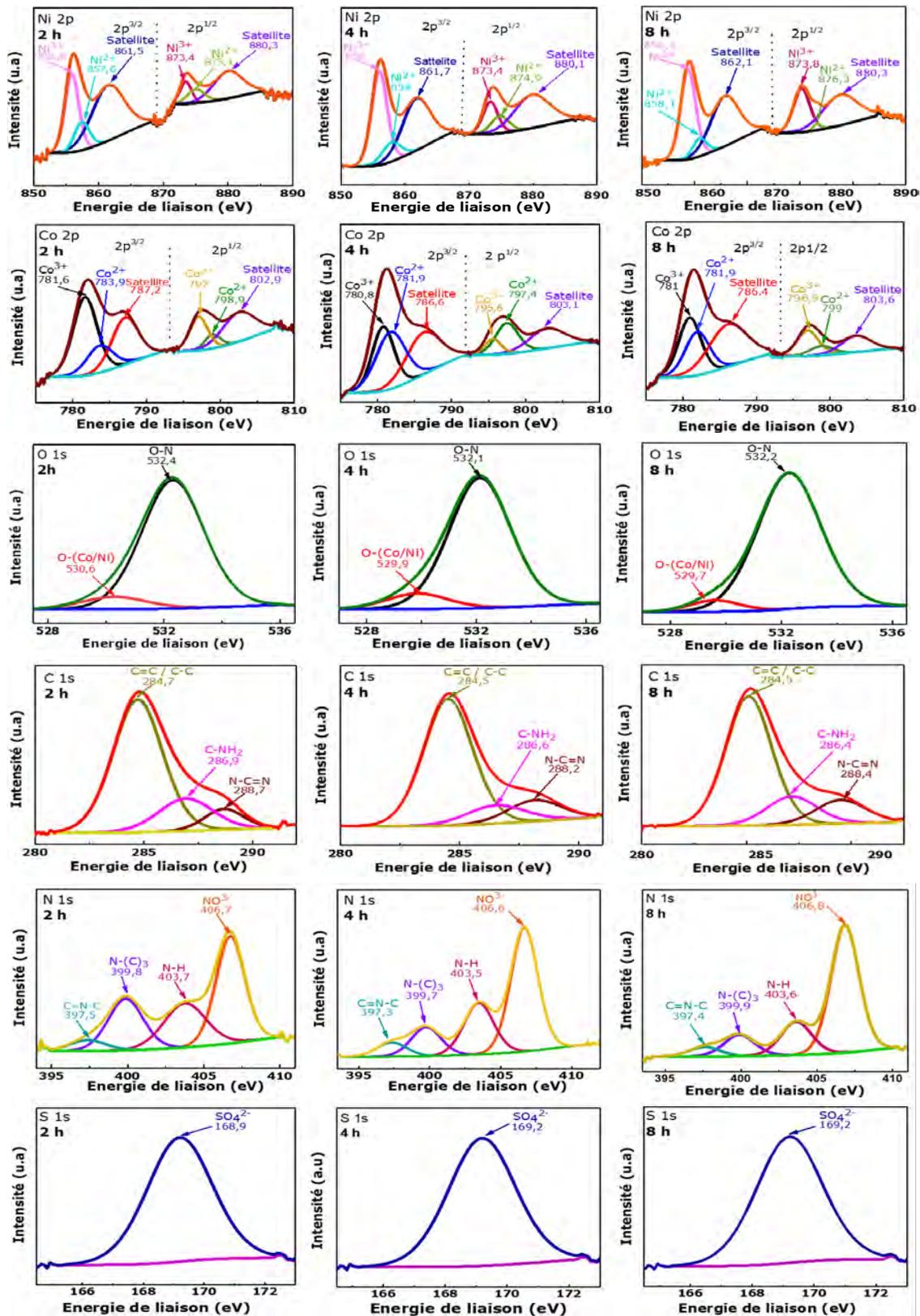


Figure 4.6| Spectres XPS à haute résolution énergétique du Ni 2p, Co 2p, O 1s, C 1s, N 1s et S 1s obtenus en surface du NiCo₂O₄@C60/g-C₃N₄ @ 2h, 4h et 8h

Au niveau des spectres de l'orbitale Co 2p, il existe deux doublets de spin-orbite dans le spectre d'émission pour Co^{2+} et Co^{3+} , indiquant la présence de deux états de valence individuels⁶. Les énergies de liaison aux alentours de 781,6, 780,8 et 781 eV sont associées au $\text{Co}^{3+} 2p^{3/2}$ et celles aux environs de 783,9, 781,9 et 791,9 eV sont liées au $\text{Co}^{2+} 2p^{3/2}$. Cependant les énergies 797, 795,6 et 796,9 eV correspondent aux $\text{Co}^{3+} 2p^{1/2}$ et celles 798,9, 797,4 et 799 eV sont liées aux $\text{Co}^{2+} 2p^{1/2}$. Les pics aux énergies 787,2 et 809,9 eV sont liés indépendamment aux satellites du Co $2p^{3/2}$ et du Co $2p^{1/2}$ pour 2h, on les retrouve aux énergies 786,6 et 803,1 eV pour 4h et 786,4 et 803,6 eV pour 8h respectivement.

Dans les spectres d'émission de l'orbitale O 1s, il est révélé la formation d'une liaison métal-oxygène typique (M-O où M = Ni ou Co) présentant un pic à 530,3, 529,9 et 529,7 eV pour 2h, 4h et 8h respectivement indiquant clairement la formation du spinelle NiCo_2O_4 et un autre pic centré autour de 532,4, 532,1 et 532,2 eV pouvant être attribué à la liaison O-N⁷.

Sur les spectres déconvolués de l'orbitale C 1s, il est clairement identifiable trois pics distincts, dont un pic élargi localisé à 284,7 eV pour l'échantillon de 2h, 284,5 eV pour l'échantillon de 4h et 284,5 eV pour celui de 8h correspondant à la coordination sp^2 carbone-carbone (C=C/C-C)⁸ du carbone 60, un autre pic détecté à 286,9 eV pour l'échantillon de 2h provenant du carbone sp^3 et est associé à la liaison C-NH₂ qui de même à 286,6 eV pour l'échantillon de 4h et 286,4 eV pour celui de 8h. Le troisième pic visualisé aux énergies 288,7, 288,2 et 288,4 eV respectivement pour les échantillons de 2h, 4h et 8h est associé à N-C=N dans les noyaux aromatiques contenant N.

Les spectres de l'orbitale N 1s sont divisés en quatre pics⁹, sortant aux valeurs 397,5, 399,8, 403,7 et 406,7 eV pour l'échantillon de 2h et correspondent respectivement aux liaisons C=N-C (N pyridinique), N(C)₃ qui renvoie à l'azote lié de façon trigonale, N-H du g-C₃N₄ (N graphitique) et à l'ion NO^{3-} . De même les spectres de l'échantillon de 4h ont les mêmes pics centrés aux énergies 397,3, 399,7, 403,5 et 406,6 et les spectres de l'échantillon de 8h aux alentours de 397,4, 399,9, 403,6 et 406,8, liés respectivement aux liaisons C=N-C, N(C)₃, N-H et NO^{3-} pour chaque échantillon.

Les spectres de l'orbitale S 2p sont ajustés chacun en un pic centré¹⁰ correspondant à l'ion SO_4^{2-} situé à 168,9 eV pour l'échantillon de 2h et 169,2 eV pour les échantillons de 2h et 4h.

Les liaisons qui viennent d'être énumérées sont tous soutenues par la littérature et confirment la synthèse réussie du $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$. La présence confirmée d'ions NO_3^- et SO_4^{2-} peut apporter une amélioration dans l'activité électrochimique mais celle aussi des couples rédox $\text{Co}^{3+}/\text{Co}^{2+}$ et $\text{Ni}^{3+}/\text{Ni}^{2+}$ peut fournir une bonne activité électrocatalytique grâce aux riches réactions d'oxydo-réductions.

2| Caractérisation Electrochimique (EC)

Dans un système à trois électrodes, les performances électrochimiques des échantillons préparés ($\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ @ 2h, 4h et 8h), sont étudiées systématiquement et les résultats sont discutés et comparés.

2.1| Étude CV

Des mesures de voltammétrie cycliques à diverses vitesses de balayage (5, 20, 50, 70 et 100 mV s^{-1}), cyclées sur une plage de potentiel positif comprise entre 0 V et 0,5 V ont été appliquées sur toutes les électrodes fabriquées à partir des composites synthétisés aux différents temps.

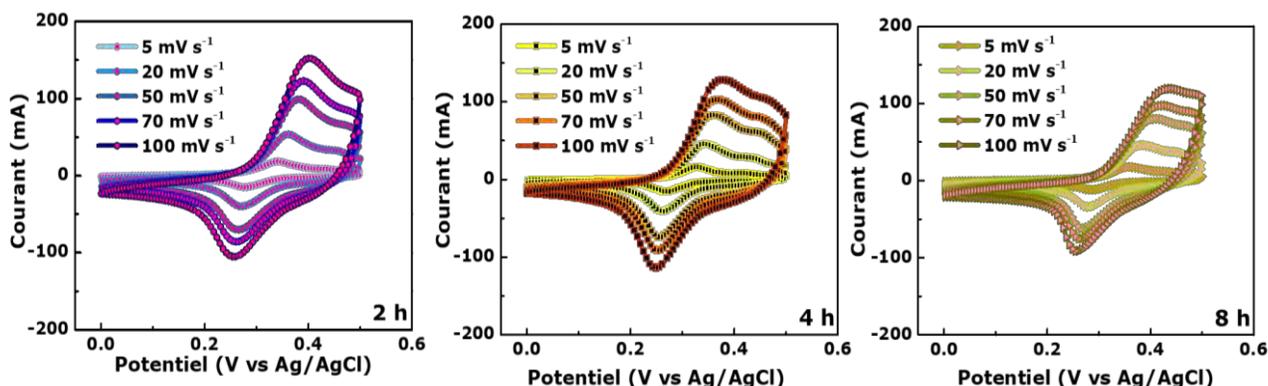


Figure 4.7/ Voltammogrammes des électrodes composite $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ réalisés avec différentes vitesses de balayage allant de 5 à 100 mV s^{-1}

La forme générale avec la présence d'une paire de pics caractéristiques dus aux réactions d'oxydation (anodique) et de réduction (cathodique) se conserve d'une expérience à l'autre et confirme également la nature faradique de l'électrode. Ce comportement est probablement dû à la présence du NiCo_2O_4 dans le matériau qui a un comportement faradique avec plusieurs états redox¹¹. Notamment, lorsque la vitesse de balayage augmente, les courants de pic anodique et cathodique augmentent légèrement et, par conséquent, leurs potentiels sont progressivement décalés en accord avec la rapidité des réactions redox¹². De plus, il convient de mentionner que les électrodes composites nanostructurées construites ont une bonne réversibilité électrochimique¹³.

2.2| Étude GCD

Les GCD correspondantes aux CV des différents échantillons à plusieurs densités de courant appliquées (0,5, 1, 2, 3, 5 et 10 A g^{-1}) sont en outre effectuées sur les électrodes au potentiel de 0,0 à 0,5 V trouvé par le CV.

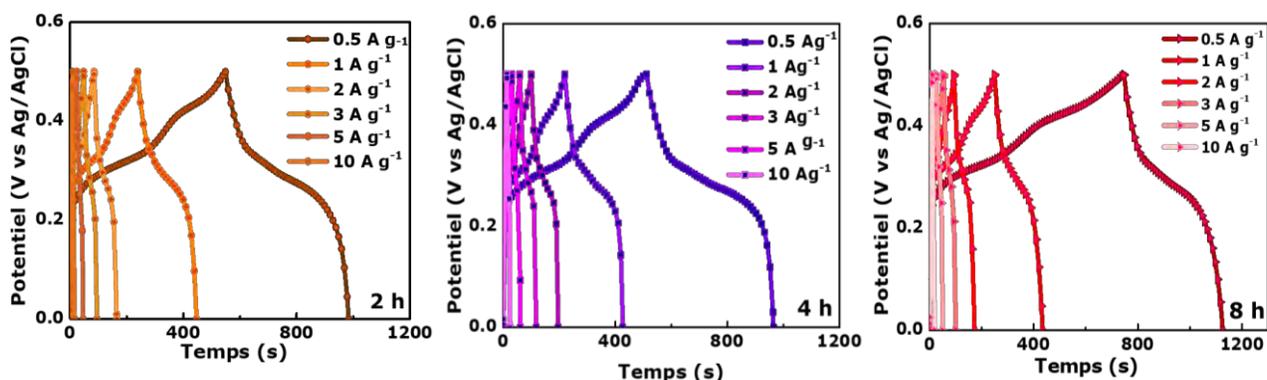


Figure 4.8/ Graphiques de charge/décharge galvanostatique (GCD) associées à différentes valeurs de courants gravimétriques allant de 0.5 à 10 A g^{-1}

Le profil non linéaire à symétrie triangulaire parfaite de charge et de décharge corroborent le comportement faradique typique déjà observé au niveau des CV, révélant les réactions redox hautement réversibles¹².

La réduction du temps de décharge avec des densités de courant croissantes également observées est liée à l'accès limité aux ions électrolytes à la surface du matériau d'électrode à haute densité de courant¹³.

Les valeurs de capacité spécifique C_s (mA h g^{-1}) des électrodes sont évaluées graphiquement sur la base GCD et calculées en utilisant l'équation 4.1¹⁴ :

$$C_s = \frac{I_d \times t_d}{3,6} \quad \text{Eq 4.1}$$

- I_d = densité de courant (A g^{-1})
- T_d = temps pour un cycle de décharge complet (s)

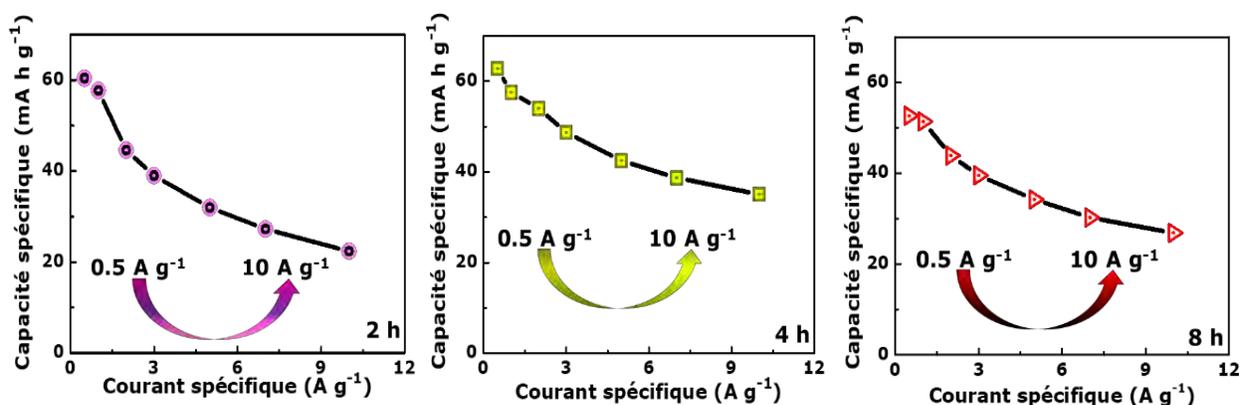


Figure 4.9/ Capacités spécifiques calculées à différents courants spécifiques allant de 0,5 à 10 A g^{-1}

Les valeurs C_s de toutes les électrodes montrent manifestement une tendance à la baisse avec l'augmentation de la densité de courant appliquée. Les C_s inférieures à des densités de courant plus élevés sont attribués à la diffusion des ions limitée. En revanche, à des densités de courant inférieurs, il y a suffisamment de temps pour réagir avec l'électrolyte¹⁵. Néanmoins, les électrodes conservent un pourcentage élevé de C_s à 20 fois plus de densité de courant appliquée de 10 A g^{-1} par rapport à C_s à $0,5 \text{ A g}^{-1}$.

2.3| Étude EIS

La spectroscopie d'impédance électrochimique (EIS) des composites a également été réalisée dans la gamme de fréquences de 100 kHz à 10 mHz par rapport au potentiel en circuit ouvert pour déterminer la résistance de transfert de charge

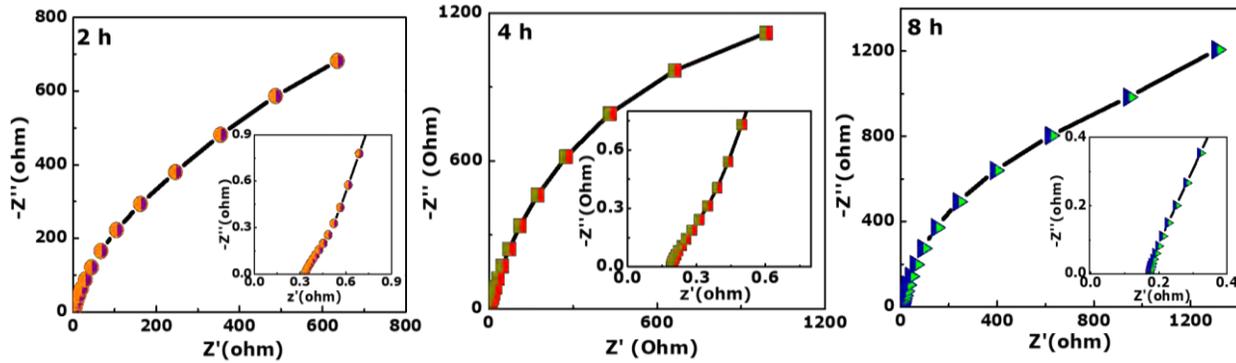


Figure 4.10/ Tracé de Nyquist (l'encart montre le graphique agrandi)

Comme observé, les graphiques de Nyquist des électrodes sont pratiquement identiques, ils n'ont pas montré de demi-cercle dans la gamme des basses fréquences, leurs parties imaginaires ont un léger écart par rapport à la ligne verticale et présentent de très faibles ESR (voir encadré de la figure). Ce qui représente des résistances de transfert de charge minimales suggérant des conductivités élevées¹⁵.

2.4| Étude de stabilité

Une longue durée de vie est une autre exigence importante pour les supercondensateurs. Dans ce contexte, les stabilités cycliques à long terme des différentes électrodes ont été évaluées par des mesures répétées de charge/décharge galvanostatique pendant 7000 cycles à une densité de courant de 10 A g^{-1} .

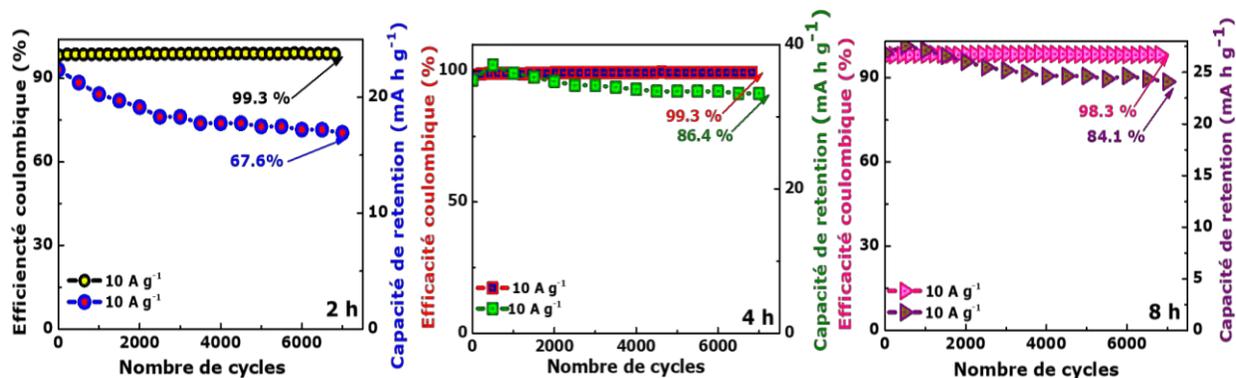


Figure 4.11/ Efficacité coulombique et capacité de rétention jusqu'à 7000 cycles

Les résultats générés par les tests de stabilité ont montré des efficacités coulombiques légèrement réduites en fonction du nombre de cycles trouvé à presque 100%, impliquant d'excellentes stabilités dans les processus de charge/décharge cyclique. Mais aussi, des capacités de rétention qui augmentent durant les 500 premiers cycles jusqu'à atteindre leurs maxima, généralement attribuée à une imprégnation progressive de l'électrolyte au sein du matériau d'électrode en raison du nombre accru de sites actifs disponibles¹⁶. Puis décroissent lentement vers les 2000 cycles avant de former un plateau jusqu'à 7000 cycles, associée à la bonne stabilité des matériaux.

2.5| Étude Comparative

Une étude comparative des différentes mesures est faite afin de connaître l'échantillon qui donne de meilleurs résultats.

Comme affichés dans la figure 4.12 (a), à une vitesse de balayage de 50 mV s^{-1} , les trois matériaux présentent tous des pics redox clairs; les anodiques sont situés à 0,38, 0,36 et 0,41 V et les cathodiques à 0,26, 0,25 et 0,27 V pour 2h, 4h et 8h respectivement. Ce qui montre que les électrodes à 2h et 8h ont des pics redox plus décalés que l'électrode à 4h qui à son tour a une plus grande surface de boucle CV et des pics plus larges. Cela implique que le $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ @ 4h est un matériau d'électrode actif prometteur pour stocker plus de charges sur sa surface afin de fournir une capacité spécifique supérieure.

A partir des courbes GCD (b), on peut observer que $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ @ 4h présente un temps de décharge plus long confirmant sa capacité bien supérieure avec une valeur C_S de $62,6 \text{ mA h g}^{-1}$ à $0,5 \text{ A g}^{-1}$ (c) suivi de $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ @ 2h avec $60,4 \text{ mA h g}^{-1}$ et $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4$ @ 8h avec la capacité la plus faible de $52,8 \text{ mA h g}^{-1}$. De plus, Elle a conservé plus de la moitié de sa capacité spécifique initiale à 10 A g^{-1} (d) avec une valeur d'environ 60% qui est aussi plus importante que celles des autres qui sont avérées être 37 % pour 2h et 51 % pour 8h.

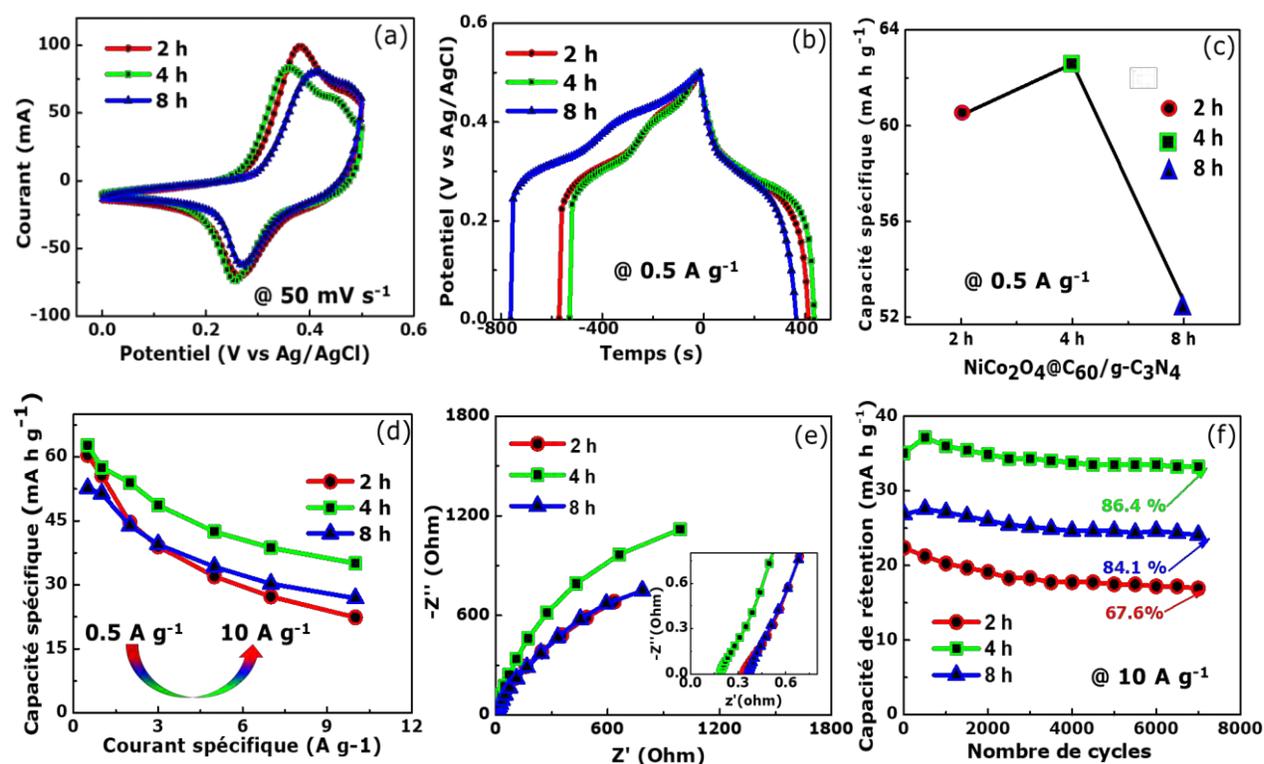


Figure 4.12| Comparaison des mesures électrochimiques : (a) tracés CV à une vitesse de balayage de 50 mV s^{-1} ; (b) courbes GCD à un courant spécifique de $0,5 \text{ A g}^{-1}$; (c) capacités spécifiques à $0,5 \text{ A g}^{-1}$; (d) variation de C_S par rapport au courant de $0,5$ à 10 A g^{-1} ; (e) graphiques de Nyquist menés dans la gamme de fréquences entre 100 kHz et 10 mHz et (f) capacités de rétention jusqu'à 7000 cycles à un courant spécifique constant de 10 A g^{-1} des différentes électrodes aux différents temps

Fait intéressant, elle a montré une valeur enregistrée de ESR plus petite (illustré en encadré (e)) de $0,19 \Omega$ par rapport à 2h et 8h qui sont égales à $0,33$ et $0,35 \Omega$ respectivement, cela suggère que $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4 @ 4\text{h}$ a une résistance interne plus faible et une conductivité considérablement plus élevée.

Après 7000 cycles successifs de charge/décharge galvanostatique (GCD), Les électrodes ont montré des stabilités exceptionnelles avec des données de rétentions de capacité significatives de 67,6, 86,4 et 84,1%, respectivement à 2h, 4h et 8h.

Ces résultats indiquent non seulement que les électrodes hybrides fabriquées sont très stables mais aussi, ils mettent en évidence la supériorité des performances électrochimiques de l'électrode hybride $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4 @ 4\text{h}$ qui présente une capacité spécifique beaucoup plus élevée et une meilleure stabilité à long terme par rapport aux autres électrodes.

Cette stabilité électrochimique de l'électrode $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4 @ 4\text{h}$ est prouvée par les cinq derniers cycles des courbes de décharge (Figure 4.13); ce qui montre que même après une longue période de charge/décharge, les courbes restent non déformées et essentiellement symétriques.

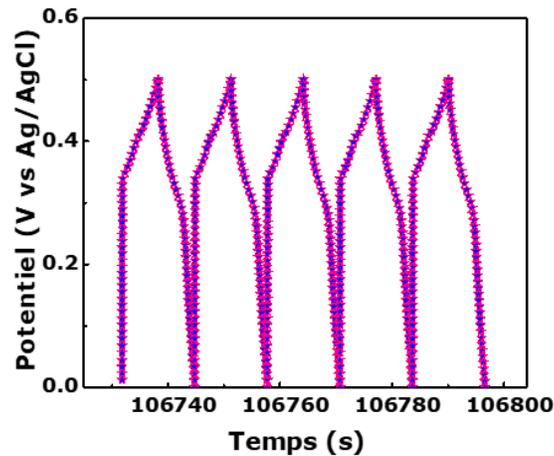


Figure 4.13| Cinq derniers de cycles de charge/décharge de $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4 @ 4\text{h}$

Cette stabilité de l'électrode $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4 @ 4\text{h}$ est toujours confirmée par Cv et EIS après stabilité.

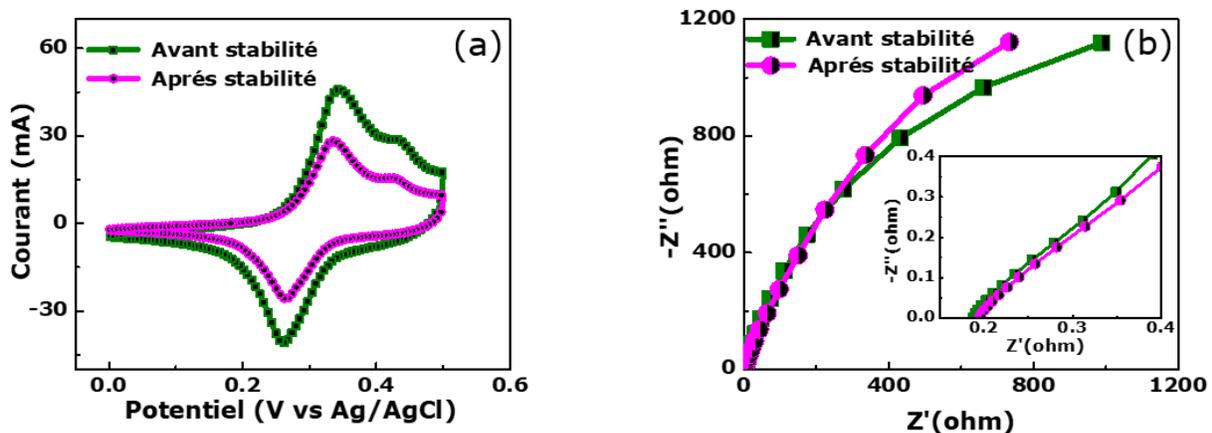


Figure 4.14| CV (a) et EIS (b) avant et après stabilité de $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60}/\text{g-C}_3\text{N}_4 @ 4\text{h}$

Initialement, les études CV ont montré un comportement faradique, et après 7000 cycles, la nature de la courbe CV est restée inchangée, avec une petite diminution de la réponse en courant pendant le cycle à long terme, ce qui indique que l'appareil a maintenu un excellent cyclage. Les valeurs de ESR, avant et après stabilité sont de 0,190 Ω et 0,193 Ω respectivement. Après 7000 cycles, la valeur de résistance a légèrement augmenté avec une différence de 0,003 Ω , ce qui prouve la bonne conductivité électrique et la bonne stabilité du dispositif tel qu'obtenu¹⁷. Cette amélioration est attribuée à une plus grande accessibilité des ions dans le matériau de l'électrode¹⁸.

Basé sur ces résultats, il peut être déduit que les excellentes performances électrochimiques de l'électrode NiCo₂O₄@C60/g-C₃N₄ @ 4h sont attribuées aux raisons suivantes :

- (i). une structure de nanoparticules agglomérées avec plus de vides entre les espaces qui facilitent l'abondance des sites actifs et accélèrent le transfert rapide des électrons et la diffusion des ions pendant le processus de redox faradique des couples redox Ni²⁺/Ni³⁺ et Co²⁺/Co³⁺,
- (ii). un pourcentage plus important de nickel et de cobalt qui fait qu'il ait des réactions redox plus riches, qui favoriserait une réponse faradique plus intense,
- (iii). une conductivité électrique plus élevée qui améliorerait le transport des porteurs et affectait la force du processus de charge/décharge.

Ces excellents résultats de l'électrode NiCo₂O₄@C60/g-C₃N₄ @ 4h sont considérablement meilleurs que ceux d'autres matériaux récemment rapportés, tels que présentés dans le tableau 4.1 :

Tableau 4.1| Comparaison de ce travail avec les données de la littérature

Matériel	Méthode de synthèse	Electrolyte	Capacité de rétention (%)	Nombre de cycles	Réf.
NiCo ₂ O ₄ /CNF	Traitement thermique	2 M KOH	81,5	2000 à 2 Ag ⁻¹	19
NiCo ₂ O ₄ /C	Hydrothermale	2 M KOH	82	3000 à 5 Ag ⁻¹	20
NiCo ₂ O ₄ /graphène	Synthèse sèche et évolutive	1 M KOH	82,1	2000 à 5 Ag ⁻¹	21
NiCo₂O₄@C60/g-C₃N₄ @ 4h	Synthèse solvothermale Verte	6 M KOH	86,4	7000 à 10 Ag⁻¹	Ce travail

Il est montré dans ce tableau la supériorité des performances électrochimiques du matériau composite NiCo₂O₄@C60/g-C₃N₄ @ 4h à d'autres matériaux carbonés de NiCo₂O₄ précédemment rapportés par la littérature dans un même électrolyte de molarités différentes. De plus il est facilement obtenu via une synthèse solvothermale verte contrairement aux autres qui sont synthétisés chimiquement ou physiquement. Il possède aussi la meilleure stabilité de cycle avec

une rétention de capacité de 86,4% après 7000 cycles à une densité de courant de 10 A g^{-1} qui surpasse largement celles des NiCo_2O_4 avec d'autres matériaux carbonés.

Cette amélioration pourrait être attribuée à la maximisation des effets synergiques des nanoparticules NiCo_2O_4 de C60 et de g- C_3N_4 .

CONCLUSION

Dans ce chapitre, il est présenté les résultats des caractérisations physico-chimiques des différents matériaux tels que synthétisés ainsi que les résultats électrochimiques. D'après ces résultats le composite $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60/g-C}_3\text{N}_4$ est un matériau d'électrode approprié pour les applications de pseudo-condensateurs. Néanmoins une préférence est portée sur $\text{NiCo}_2\text{O}_4@\text{C60/g-C}_3\text{N}_4 @ 4\text{h}$ qui possède les meilleures performances électrochimiques.