

机器学习原子势在锂金属负极中的应用

赖根明¹, 焦君宇¹, 蒋 耀², 郑家新^{1,2}, 欧阳楚英²

(1. 北京大学深圳研究生院新材料学院, 广东 深圳 518055; 2. 宁德时代 21C 创新实验室, 福建 宁德 352100)

摘 要: 锂金属是下一代二次电池的理想负极材料。然而, 锂枝晶生长存在安全隐患, 并导致电池 Coulombic 效率低, 这严重制约了锂二次电池的商业应用。目前, 人们对锂的沉积生长机制在原子尺度上还了解甚少, 同时对锂枝晶的成因也众说纷纭。近年来, 机器学习在计算材料学中的应用使得许多以前无法实现的进步成为可能, 本文综述了机器学习原子势在锂金属负极研究中的应用。

关键词: 锂金属负极; 机器学习; 分子动力学; 计算模拟

中图分类号: O646 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2023)02-0469-07

网络出版时间: 2022-12-28



Analysis of Li Metal Anode by Machine Learning Potential

LAI Genming¹, JIAO Junyu¹, JIANG Yao², ZHENG Jiaxin^{1,2}, OUYANG Chuying²

(1. School of Advanced Materials, Peking University, Shenzhen Graduate School, Shenzhen 518055, Guangdong, China;

2. Fujian science & technology innovation laboratory for energy devices of China (21C-LAB), Ningde 352100, Fujian, China)

Abstract: Li metal is regarded as an ideal anode for the next-generation secondary batteries. However, the growth of Li-dendrite results in a low coulomb efficiency, thus restricting the commercial application of Li secondary batteries. The mechanism of Li deposition and growth in an atomic scale is still unclear, and there are different opinions about the origin of Li dendrite. Recent work has dealt with the application of machine learning in computational materials science. This review represented the applications of machine learning potential for the study of Li metal anode.

Keywords: lithium metal anode; machine learning; molecular dynamics; simulation

锂金属具有较低的电化学势(与标准氢气电极相比为 -3.04 V)和高达 $3860\text{ mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$ 的比容量, 使其成为下一代二次电池的理想负极材料^[1-3]。然而, 锂二次电池的商业化应用受到安全性和低 Coulombic 效率的阻碍^[4-5]: 在循环过程中如果不受控制的锂枝晶生长穿透了隔膜, 电池会短路^[6], 而形成的“死锂”会降低 Coulombic 效率^[7]。多种表征方法已被用来阐明锂金属沉积的动态行为^[8-9]。虽然研究人员对锂枝晶生长的原子尺度行为普遍一致, 但大多数实验研究只描述了这一现象, 没有提供全面的理解^[10-11]。

分子动力学模拟在机理研究中具有重要的作用。但是长期以来, 分子动力学模拟的发展都面临着精度与效率不可兼得的困难。准确求解量子力学方程所需的计算资源, 依体系尺寸约呈 3 次及以上幂次增长, 而拟合经验参数的传统力场模型, 并不能保证结果的准确性。

机器学习是一种新兴的、功能强大的技术^[12-13], 可用于优化势函数参数, 其精度接近于量子力学计算^[14-16]。最近, 基于机器学习的势场被成功地应用于锂金属负极的研究中。本文将首先介绍机器学习

收稿日期: 2022-09-26。 修订日期: 2022-10-24。

基金项目: 国家自然科学基金(52272180, 12174162, 51962010); 宁德时代创新实验室 21C-LAB、IER 基金 2021(IERF202104)。

第一作者: 赖根明(1998—), 男, 博士研究生。

通信作者: 郑家新(1985—), 男, 博士, 副教授。

Received date: 2022-09-26. Revised date: 2022-10-24.

First author: LAI Genming (1998—), male, Doctoral candidate.

E-mail: genmingl@stu.pku.edu.cn

Correspondent author: ZHENG Jiaxin (1985—), male, Ph.D., Associate Professor.

E-mail: zhengjx@pkusz.edu.cn

势场的基本概念和原理, 其次对锂金属负极商业化应用存在的问题进行分析, 最后将概述近期机器学习势场在锂金属负极研究中的应用进展。本综述将为研究者从原子尺度上理解锂金属电池中的枝晶生长现象以及机器学习在电池中的应用提供新的视角。

1 机器学习势场

近些年发展起来的机器学习势场方法, 主要是通过机器学习拟合第一性原理计算的数据得到准确原子间相互作用势, 以期实现精度与效率的统一,

即以近似经验力场的计算效率实现高精度的大尺度分子模拟。

机器学习开发分子动力学势场的一般步骤如图 1 所示。首先, 通过第一性原理计算或者其他方法获得训练所需的数据集。然后, 将数据集中的构型转换为原子描述符作为机器学习的输入, 其中原子描述符的构建需满足一定的物理约束, 如可扩展性、旋转对称性、平移不变性和置换不变性等。最后, 将原子描述符作为输入、能量和力等信息作为输出放入相应的机器学习模型进行训练。



图 1 机器学习势场开发的一般步骤

Fig. 1 Steps of developing machine learning potential

早在 2007 年, Behler 和 Parrinello 就提出一种用广义的神经网络来构建分子动力学势场的方法: 高维神经网络势(HDNNP)^[14]。该方法将神经网络的精度和灵活性与受经验势启发的势能面表示相结合, 克服了限制神经网络应用于低维势能面的局限性。HDNNP 的主要思想是将系统的总能量 E 表示为每个原子能量贡献 E_i 的总和: $\sum_i E_i$ 。为了定义原子的局部环境, HDNNP 采用了原子间距离 R_{ij} 的截止函数 f_c , 见式(1)^[14]:

$$f_c(R_{ij}) = \begin{cases} 0.5 \times \left(\cos \frac{\pi R_{ij}}{R_c} + 1 \right) & \text{for } R_{ij} \leq R_c, \\ 0 & \text{for } R_{ij} > R_c. \end{cases} \quad (1)$$

作为 HDNNP 的描述符, 对称函数由 2 项构成, 即径向对称函数 G_i^1 [式(2)]和角项对称函数 G_i^2 [式(3)]。径向对称函数 G_i^1 为参数是 η 和 R_s 的 Gaussian 函数的和:

$$G_i^1 = \sum_{j \neq i}^{\text{all}} e^{-\eta(R_{ij} - R_s)^2} f_c(R_{ij}) \quad (2)$$

角项则通过对角的余弦值求和来构造^[14]:

$$G_i^2 = 2^{1-\xi} \sum_{j,k \neq i}^{\text{all}} (1 + \lambda \cos \theta_{ijk})^\xi \times e^{-\eta(R_{ij}^2 + R_{ik}^2 + R_{jk}^2)} f_c(R_{ij}) f_c(R_{ik}) f_c(R_{jk}) \quad (3)$$

近几年, Zhang 等^[17]提出一种用深度神经网络拟合第一性原理计算的结果得到分子动力学势场的方法: 深度势能分子动力学(DPMD), 并获得了广泛关注。DPMD 的基本模型如图 2 所示, 在 DPMD 中, 总的能量也是由每个原子的能量相加构成的, 即 $E = \sum_i E_i$ 。DPMD 的描述符 D 主要是由 2 个矩阵所决

定的, 一个是环境矩阵, 它每一列上面是原子的相对坐标。另一个是嵌入矩阵, 这个矩阵是通过神经网络学到的矩阵。然后, 将得到的描述符 D 作为深度神经网络的输入, 它在输出中返回能量 E_i 。深度神经网络是一个前馈网络, 其中数据从输入层流向输出层(E_i), 通过由若干节点组成的多个隐藏层, 这些节点从前一层输入数据并将数据输出到下一层。

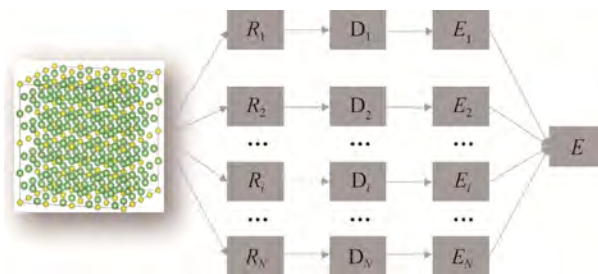


图 2 深度势能分子动力学模型示意图^[18]

Fig. 2 Schematic plot of deep potential molecular dynamics model training^[18]

同时, DPMD 在损失函数中加入了力与维里系数, 且各项权重随时间改变, 其表达式为式(4)^[17]:

$$L(p_e, p_f, p_\xi) = \frac{p_e}{N} \Delta E^2 + \frac{p_f}{3N} \sum_i |\Delta F_i|^2 + \frac{p_\xi}{9N} \|\Delta \Xi\|^2 \quad (4)$$

2 锂金属负极

自 20 世纪 90 年代商业化以来, 锂离子电池在过去几十年中为电子产品、电动汽车等提供动力方面取得了巨大成功^[19]。然而, 以传统石墨作为负极的锂离子电池将已接近其理论比能量密度, 但它们仍无法提供电动汽车长程应用所需的高能量密度^[20]。因此, 为

了满足不断增长的储能需求, 迫切需要发展更高能量密度的先进电池技术。锂金属被认为是理想负极材料, 因为它具有高理论比容量和低氧化还原电位^[4, 21-23]。

虽然锂金属阳极在高能量密度电池应用中显示出巨大的潜力, 但由于存在诸多挑战, 它尚未实现商业化应用。主要有 3 个问题需要克服^[24]: 1) 不可控的锂枝晶生长导致严重的安全问题; 2) 由于电解质与金属锂的不可阻挡的反应而导致的电解质消耗; 3) 机械不稳定性, 包括固体电解质相间层的断裂和由此产生的低库伦效率。

为了解决这种不可控的枝晶生长等问题, 需要提高对锂沉积生长机理的基本认识。数值模拟方法在机理研究中具有至关重要的作用。多种数值模拟方法已经被用来对锂金属沉积机理进行研究, 包括: 有限元模拟^[25-29]、第一性原理计算^[30-32]、分子动力学模拟^[33-35]。虽然有限元模拟可以模拟的规模大时间长, 但由于依赖于偏微分方程, 它无法反映沉积过程中锂原子的运动^[25]。此外, 虽然第一性原理计算能够准确地反映原子尺度的动力学和热力学性质^[31], 但是它高昂的计算成本限制了模拟尺度在数百个原子和几皮秒之内^[36]。分子动力学模拟由于尺度更大、速度更快, 克服了第一性原理计算的局限性。然而, 基于经典势的预测和实验结果之间仍然存在差异^[37-38]。

3 机器学习势场在锂金属负极中的研究进展

最近, 基于机器学习的势场被成功地应用于锂

金属负极的研究中, 在锂沉积生长等机理的研究中取得了许多新的突破, 为锂金属负极的商业化应用提供了理论支撑, 为机器学习应用于材料研究提供了新的视角。

3.1 机器学习势场研究金属锂自愈机理

Zheng 等^[39]使用机器学习方法开发了一个具有第一性原理计算精度的锂表面深度势能模型, 以此来研究锂金属负极。表面形貌是锂沉积的关键^[26, 31, 40], 因此首先研究了不同初始原子尺度表面形貌下锂沉积的动态行为。为初始分子动力学结构构建了 4 种表面形态(图 3a~图 3d), 发现在均匀沉积过程中, 所有的表面缺陷都逐渐被填充, 形成了类似于平面的光滑表面。这表明, 锂金属在均匀沉积过程中具有固有的表面自愈特性。为了阐明表面自愈机制, 计算了不同结构的原子势能, 发现在体相里的锂原子势能通常低于表面锂原子的势能, 这表明表面锂原子更活跃(图 3e~图 3f)。当只比较表面原子时, 三角形表面尖端原子的势能更高, 谷底中的原子势能更低。尖端和谷底之间的主要区别在于局部原子形成的角度, 势能随着角度的增加而增加(图 3g)。因此, 锂表面自愈机制起源于锂原子在不同表面形貌下的势能变化。

在高电流密度下, 非均匀沉积在电化学上受到青睐, 从而导致锂枝晶的生长^[4], 这种现象通常被认为与电场中的尖端效应或不均匀的电极表面有关^[26]。因此, Zheng 等^[39]使用机器学习势场模型模拟了非均匀沉积(图 4a), 以研究枝晶生长的机理, 从而确

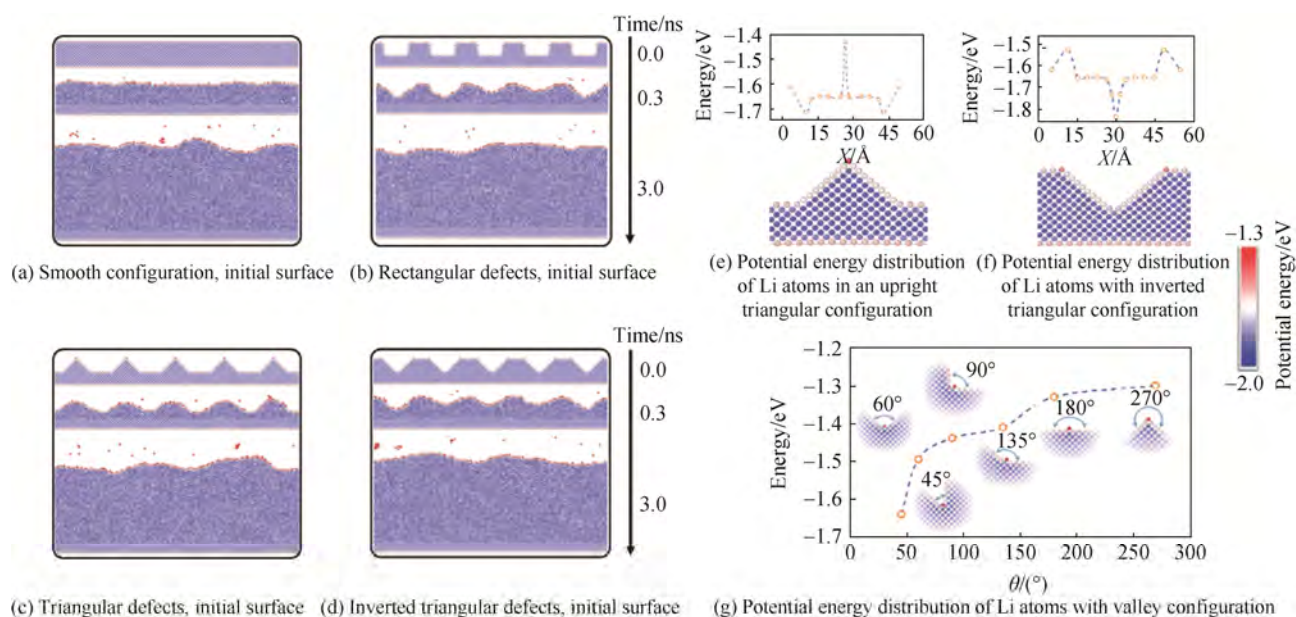


图 3 锂均匀沉积和表面自愈^[39]

Fig. 3 Li homogeneous deposition and surface self-healing^[39]

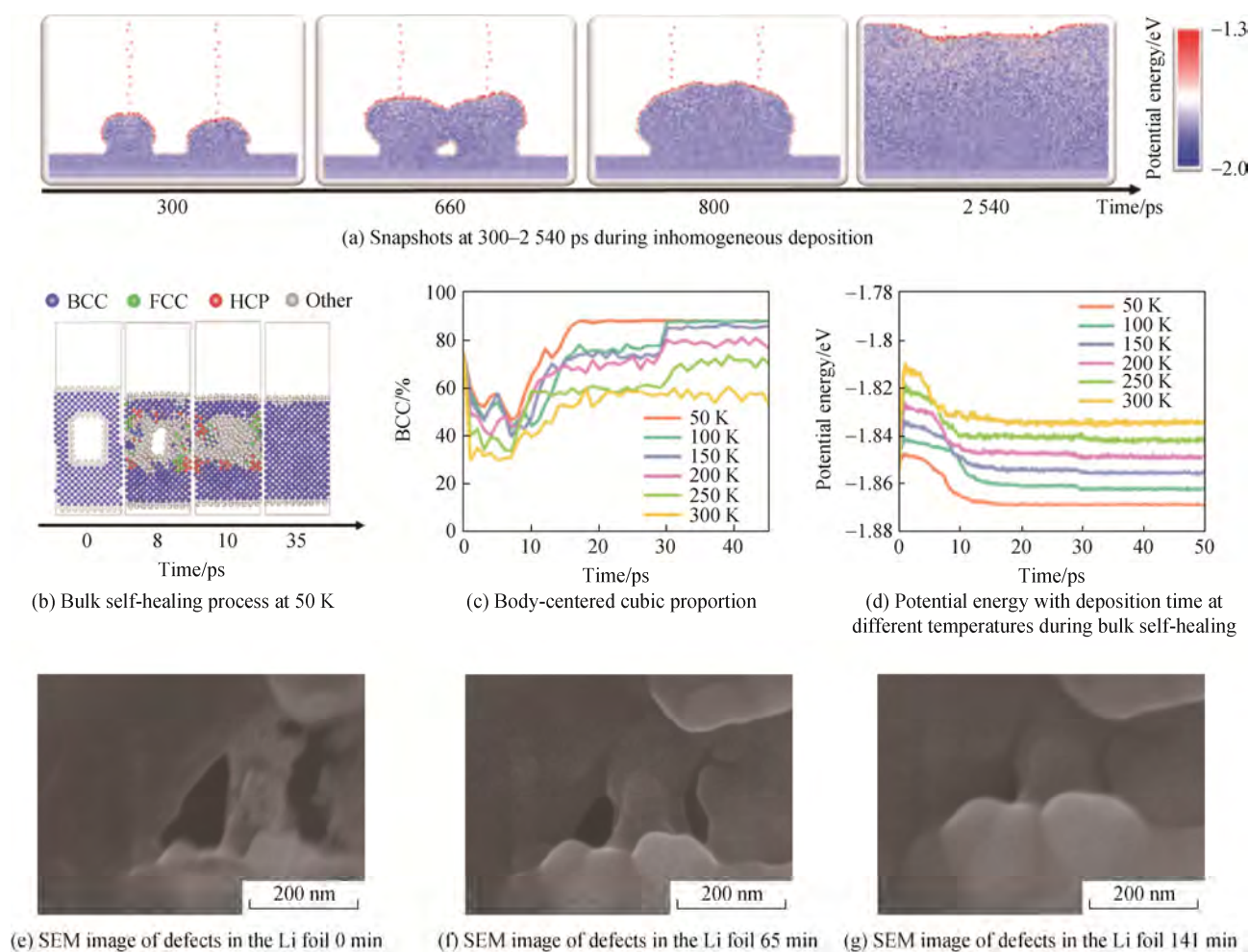


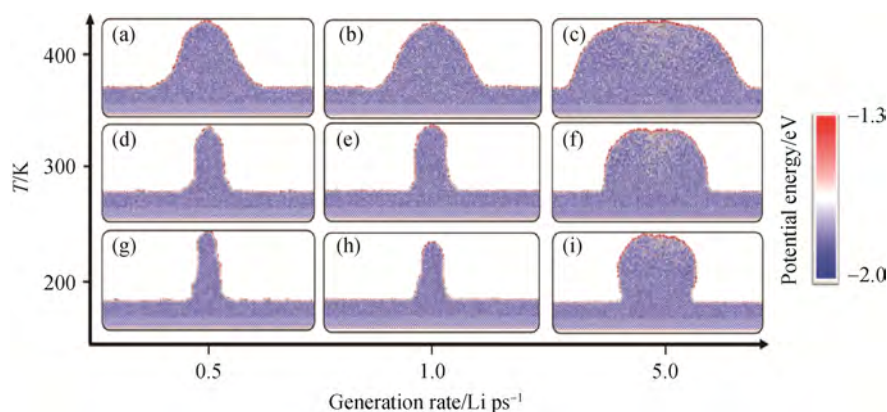
图4 不均匀沉积和体相自愈^[39]
Fig. 4 Inhomogeneous deposition and bulk self-healing^[39]

定抑制枝晶生长的方法。结果表明, 2 个半球形枝晶分别生长, 直到它们彼此相遇而形成 1 个更大的半球形枝晶。在大约 660 ps 之后, 2 个枝晶之间形成了 1 个孔隙, 当 2 个枝晶在约 800 ps 融合时, 该孔隙缩小然后完全消失。大半球在进一步沉积后与其他对称半球融合, 最终形成光滑的表面。为了进一步研究体相自愈机制, 模拟了长方体腔内锂晶体的生长(图 4b), 可以看到, 空腔逐渐缩小, 直到约 30 ps 时完全消失。自适应共近邻分析(a-CNA)^[41]显示体心立方(BCC)状态的原子数量先减少, 然后增加, 直到自愈完成(图 4c)。这表明部分锂在沉积过程中转变为非晶态, 然后在自愈后又回到晶态。非晶态锂比晶态锂更具流动性, 作为润滑中间体, 触发体相自愈。

3.2 机器学习势场研究锂枝晶形貌

在自愈机理研究的基础上, Zheng 等^[39]进一步研究了锂枝晶的形貌。在 3 种不同的温度和不同锂原子冒出速率下模拟了具有尖端效应的非均匀沉积(图 5)。在恒定的冒出速率下, 枝晶的底部直径随着

温度的升高而增大, 而在恒定的温度下, 顶部直径随着冒出速率的增加而增大。枝晶形貌可分为 3 种类型: "针状"、"蘑菇状"和"半球状"。在低温和较低的冒出速率下, 表面锂原子的流动性较差, 导致沉积区域出现"针状"形貌。沉积的锂原子在与锂金属表面接触后立即结晶, 产生清晰的晶格条纹。表面锂原子的流动性随着温度的升高而增加, 导致锂原子扩散的面积更大, 因此, "针状"枝晶在更高的温度下具有更大的直径。在低温和高冒出速率下, 由于底部和顶部原子的流动性存在显著差异, 枝晶有利于形成"蘑菇状"形态。这种形貌可归因于枝晶底部容易发生结晶, 导致锂原子流动性差, 而尖端较高的表面温度导致锂原子快速扩散, 形成"蘑菇状"形貌。在高温和高生成速率下, 锂以超流体液态存在于表面上, 导致"半球状"枝晶。2 个"半球状"枝晶之间的接触触发了体相自愈机制, 从而抑制了枝晶的形成。因此, 通过提高温度和冒出速率来增加表面锂原子的流动性是抑制枝晶生长的有效方法。



Note: $R_g = 0.5 \text{ Li ps}^{-1}$ (a, d, g), 1.0 Li ps^{-1} (b, e, h) and 5.0 Li ps^{-1} (c, f, i). $T = 400 \text{ K}$ (a-c), 300 K (d-f) and 200 K (g-i).

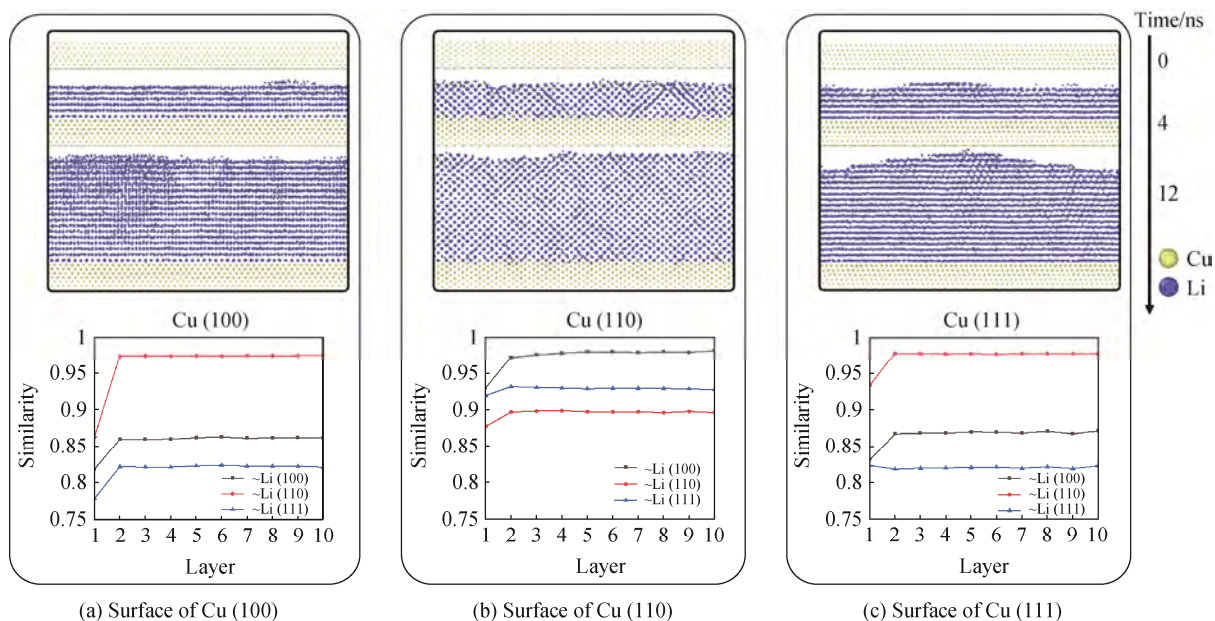
图 5 不同温度(T)和冒出速率(R_g)下非均匀沉积的快照, 在枝晶高度约 10 nm 处^[39]

Fig. 5 Snapshots of inhomogeneous deposition at different temperatures (T) and generation rates (R_g) at a dendrite altitude of 10 nm ^[39]

3.3 机器学习势场研究锂在铜表面上的沉积特征

在锂金属势场模型的基础上, Zheng 等^[18, 42]使用机器学习算法进一步开发了 1 个具有第一性原理计算精度的 Li-Cu 神经网络界面势场模型。通过该模型

进行分子动力学模拟研究了在不同密勒指数的铜表面上锂沉积的特征(图 6)。通过表面相似性分析方法, 发现 Cu(100)和 Cu(111)表面的锂层都更倾向于形成 Li(110), 而 Cu(110)表面的锂层更倾向于形成 Li(100)。



Note: (a-c) Snapshots of Li homogeneous deposition and the curve of SSA results of the first 10 Li monolayers.

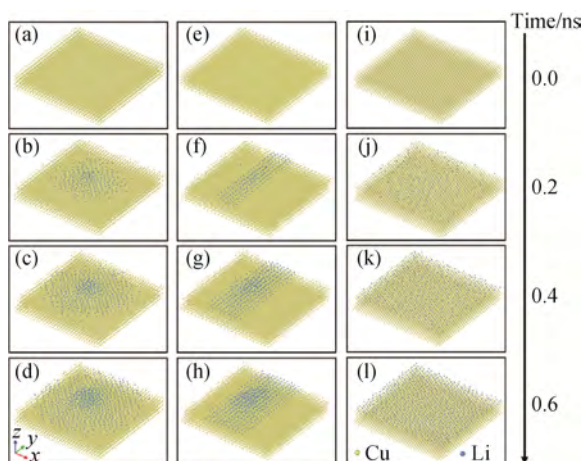
图 6 具有不同密勒指数的铜表面上的锂均匀沉积和表面相似性分析结果^[42]

Fig. 6 Li homogeneous deposition on the Cu surfaces with the different indices and the results of SSA^[42]

3.4 机器学习势场研究比较锂在不同铜表面上的性能

为进一步研究不同铜表面对锂沉积的影响, Zheng 等^[42]进一步引入了非均匀沉积来模拟 Cu(100)、Cu(110)和 Cu(111)的尖端效应(图 7)。研究发现, 在锂初始沉积过程中, Cu(100)和 Cu(111)表面上的锂原子在 X 和 Y 方向上有规律地扩散并迅速

扩散到整个表面。然而, Li 原子在 Cu(110)表面上的扩散明显较慢, 并反映出强烈的各向异性。同时结合动力学等性质的计算, 表明锂原子在具有不同密勒指数的铜表面上表现出不同的势能面分布特征和动力学特征, Cu(100)和 Cu(111)表面的性能要明显优于 Cu(110)表面, 这为商业铜箔的制造提供了理论支撑。



Note: (a–d) is Cu(100); (e–h) is Cu(110); (i–l) is Cu(111)

图 7 锂在铜表面上 0~0.6 ns 的非均匀沉积快照^[42]

Fig. 7 Snapshots of inhomogeneous deposition at 0–0.6 ns on the Cu surfaces^[42]

4 总结与展望

机器学习在材料中的应用已获得广泛关注，本综述主要介绍了近年来机器学习势场在锂金属负极中的研究进展。通过机器学习开发分子动力学势场实现了金属锂的沉积生长模拟，发现金属锂存在 2 种自修复现象：表面修复与体相修复。通过不同温度与沉积速率的模拟，发现了 3 种不同的枝晶形貌：“针状”、“蘑菇状”和“半球状”。通过锂在铜上的沉积模拟发现了不同铜表面对锂沉积结果的影响。本综述为利用机器学习势场在原子尺度上研究锂沉积机理提供了 1 种新的策略，并为今后提高锂金属负极的性能提供了新的视角。

结合对机器学习势场及锂金属负极研究现状的分析，在未来围绕以下 2 个方面展开系统性研究很有必要：1) 从机器学习势的角度看，虽然目前已经有多势场开发方法并在很多体系的研究上取得了成功，但人们对于更加复杂的体系仍难以开发出有效的机器学习势，比如适用于电解液体系的高精度高效率势场，这需从底层出发建立更加行之有效的势场开发方法模型；2) 从锂金属负极研究的角度看，锂负极与电解液界面结构和反应对电池的性能和寿命具有至关重要的作用，然而实验和传统理论方法在处理这类界面问题时都面临着巨大的挑战，对此类界面反应过程的准确高效模拟将是今后的重要研究方向。

参考文献:

[1] TARASCON J M, ARMAND M. Issues and challenges facing rechargeable lithium batteries[J]. *Nature*, 2001, 414(6861): 359–367.

[2] XU W, WANG J, DING F, et al. Lithium metal anodes for rechargeable batteries[J]. *Energy Environ Sci*, 2014, 7(2): 513–537.

[3] SHEN X, ZHANG X Q, DING F, et al. Advanced electrode materials in lithium batteries: Retrospect and prospect[J]. *Energy Mater Advances*, 2021, 2021: 1205324.

[4] LIU B, ZHANG J G, XU W. Advancing lithium metal batteries[J]. *Joule*, 2018, 2(5): 833–845.

[5] CHENG X B, LIU H, YUAN H, et al. A perspective on sustainable energy materials for lithium batteries[J]. *SusMat*, 2021, 1(1): 38–50.

[6] CHENG X B, ZHANG R, ZHAO C Z, et al. Toward safe lithium metal anode in rechargeable batteries: A review[J]. *Chem Rev*, 2017, 117(15): 10403–10473.

[7] PAUL P P, MCSHANE E J, COLCLASURE A M, et al. A review of existing and emerging methods for lithium detection and characterization in Li-ion and Li-metal batteries[J]. *Adv Energy Mater*, 2021, 11(17): 2100372.

[8] HE Y, REN X, XU Y, et al. Origin of lithium whisker formation and growth under stress[J]. *Nat Nanotechnol*, 2019, 14(11): 1042–1047.

[9] WANG S, XU H, LI W, et al. Interfacial chemistry in solid-state batteries: Formation of interphase and its consequences[J]. *J Am Chem Soc*, 2018, 140(1): 250–257.

[10] SUN Y, YANG T, JI H, et al. Boosting the optimization of lithium metal batteries by molecular dynamics simulations: A perspective[J]. *Adv Energy Mater*, 2020, 10(41): 2002373.

[11] ALBERTUS P, ANANDAN V, BAN C, et al. Challenges for and pathways toward Li-metal-based all-solid-state batteries[J]. *ACS Energy Lett*, 2021, 6(4): 1399–1404.

[12] LIU Y, GUO B, ZOU X, et al. Machine learning assisted materials design and discovery for rechargeable batteries[J]. *Energy Storage Mater*, 2020, 31: 434–450.

[13] 刘悦, 邹欣欣, 杨正伟, 等. 材料领域知识嵌入的机器学习[J]. *硅酸盐学报*, 2022, 50(3): 863–876.

LIU Y, ZOU X, YANG Z, et al. *J Chin Ceram Soc*, 2022, 50(3): 863–876.

[14] BEHLER J, PARRINELLO M. Generalized neural-network representation of high-dimensional potential-energy surfaces[J]. *Phys Rev Lett*, 2007, 98(14): 146401.

[15] ZHANG L, HAN J, WANG H, et al. Deep potential molecular dynamics: A scalable model with the accuracy of quantum mechanics[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 120(14): 143001.

[16] BARTÓK A P, PAYNE M C, KONDOR R, et al. Gaussian approximation potentials: The accuracy of quantum mechanics, without the electrons[J]. *Phys Rev Lett*, 2010, 104(13): 136403.

[17] ZHANG L, HAN J, WANG H, et al. Deep potential molecular dynamics: A scalable model with the accuracy of quantum mechanics[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 120(14): 143001.

[18] LAI G, JIAO J, FANG C, et al. A deep neural network interface potential for Li–Cu systems[J]. *Adv Mater Interfaces*, 2022, 9(27): 2201346.

[19] ARMAND M, TARASCON J M. Building better batteries[J]. *Nature*, 2008, 451(7179): 652–657.

[20] JANEK J, ZEIER W G. A solid future for battery development[J]. *Nat Energy*, 2016, 1(9): 1–4.

[21] ALBERTUS P, BABINEC S, LITZELMAN S, et al. Status and challenges in enabling the lithium metal electrode for high-energy and low-cost rechargeable batteries[J]. *Nat Energy*, 2017, 3(1): 16–21.

[22] GAO X, ZHOU Y N, HAN D, et al. Thermodynamic understanding of

- Li-dendrite formation[J]. *Joule*, 2020, 4(9): 1864–1879.
- [23] XU W, WANG J, DING F, et al. Lithium metal anodes for rechargeable batteries[J]. *Energy Environ Sci*, 2014, 7(2): 513–537.
- [24] ZHANG Y, ZUO T T, POPOVIC J, et al. Towards better Li metal anodes: challenges and strategies[J]. *Mater Today*, 2020, 33: 56–74.
- [25] JANA A, WOO S I, VIKRANT K S N, et al. Electrochemomechanics of lithium dendrite growth[J]. *Energy Environ Sci*, 2019, 12(12): 3595–3607.
- [26] WANG S-H, YIN Y X, ZUO T T, et al. Stable Li metal anodes *via* regulating lithium plating/stripping in vertically aligned microchannels[J]. *Adv Mater*, 2017, 29(40): 1703729.
- [27] WU J, RAO Z, LIU X, et al. Polycationic polymer layer for air-stable and dendrite-free Li metal anodes in carbonate electrolytes[J]. *Adv Mater*, 2021, 33(12): 2007428.
- [28] XU X, LIU Y, HWANG J Y, et al. Role of Li-ion depletion on electrode surface: Underlying mechanism for electrodeposition behavior of lithium metal anode[J]. *Adv Energy Mater*, 2020, 10(44): 2002390.
- [29] LIU Y, XU X, SADD M, et al. Insight into the critical role of exchange current density on electrodeposition behavior of lithium metal[J]. *Adv Sci*, 2021, 8(5): 2003301.
- [30] JÄCKLE M, GROß A. Microscopic properties of lithium, sodium, and magnesium battery anode materials related to possible dendrite growth[J]. *J Chem Phys*, 2014, 141(17): 174710.
- [31] JÄCKLE M, HELMBRECHT K, SMITS M, et al. Self-diffusion barriers: Possible descriptors for dendrite growth in batteries?[J]. *Energy Environ Sci*, 2018, 11(12): 3400–3407.
- [32] JIAO J, XIAO R, HAN M, et al. Impact of hydrogen on lithium storage on graphene edges[J]. *Appl Surf Sci*, 2020, 515: 145886.
- [33] LI L, BASU S, WANG Y, et al. Self-heating-induced healing of lithium dendrites[J]. *Science*, 2018, 359(6383): 1513–1516.
- [34] YANG M, LIU Y, NOLAN A M, et al. Interfacial atomistic mechanisms of lithium metal stripping and plating in solid-state batteries[J]. *Adv Mater*, 2021, 33(11): 2008081.
- [35] WANG X, PAWAR G, LI Y, et al. Glassy Li metal anode for high-performance rechargeable Li batteries[J]. *Nat Mater*, 2020, 19(12): 1339–1345.
- [36] BEHLER J. First principles neural network potentials for reactive simulations of large molecular and condensed systems[J]. *Angew Chem Int Ed*, 2017, 56(42): 12828–12840.
- [37] NICHOL A, ACKLAND G J. Property trends in simple metals: An empirical potential approach[J]. *Phys Rev B*, 2016, 93(18): 184101.
- [38] VELLA J R, STILLINGER F H, PANAGIOTOPOULOS A Z, et al. A comparison of the predictive capabilities of the embedded-atom method and modified embedded-atom method potentials for lithium[J]. *J Phys Chem B*, 2015, 119(29): 8960–8968.
- [39] JIAO J, LAI G, ZHAO L, et al. Self-healing mechanism of lithium in lithium metal[J]. *Adv Sci (Weinh)*, 2022: e2105574.
- [40] DING F, XU W, GRAFF G L, et al. Dendrite-free lithium deposition *via* self-healing electrostatic shield mechanism[J]. *J Am Chem Soc*, 2013, 135(11): 4450–4456.
- [41] STUKOWSKI A. Structure identification methods for atomistic simulations of crystalline materials[J]. *Modell Simul Mater Sci Eng*, 2012, 20(4): 045021.
- [42] LAI Genming, JIAO Junyu, FANG Chi, et al. The mechanism of Li deposition on the Cu substrates in the anode-free Li metal batteries[J]. *Small*, 2022. Doi: 10.1002/sml.202205416.