

弹性聚合物固态电解质界面膜保护金属锂负极

卢 微^{1,2}, 王子豪^{1,3}, 赵安顺^{1,3}, 于明希^{1,3}, 杜 米^{1,3}, 赵 雪^{1,3}, 张文静^{1,3}, 刘 梅³, 冯 明^{1,3}

(1. 吉林师范大学, 功能材料物理与化学教育部重点实验室, 长春 130103;

2. 吉林师范大学信息技术学院, 吉林 四平 136000; 3. 吉林师范大学物理学院, 吉林 四平 136000)

摘 要: 固态电解质界面膜(SEI)的性质直接影响着锂金属电池中金属锂负极的稳定性。本文通过原位紫外光聚合方法构筑了弹性聚合物人工固态电解质界面膜(EP-SEI)保护的金属锂负极。这种 EP-SEI 具有优异的均匀性、稳定性和弹性, 在电池循环中促进锂离子均匀沉积。这些特性可以抑制锂枝晶的生成, 缓冲金属锂负极在循环时的体积变化, 有效保护金属锂负极。这种 EP-SEI 保护的金属锂负机组装的 LFP || Li 电池和 NCM811 || Li 电池在 0.5 C 倍率下的最高容量分别可达到 164.1 mA·h·g⁻¹ 和 187.1 mA·h·g⁻¹, 并稳定循环 500 圈。

关键词: 人工固态电解质界面; 金属锂负极; 锂金属电池; 聚合物; 高弹性

中图分类号: TB332 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2024)07-2187-10

网络出版时间: 2024-06-11



随着我国“双碳”目标的建立, 以及新能源和储能技术的快速发展, 人们对高安全、高比能的锂电池的要求日益增加^[1-2]。在下一代锂电池中, 金属锂负极被视为锂金属电池发展的重点。金属锂负极因具备极低的电化学电势(-3.040 V, 对标准氢电极)和极高的理论比容量(3 860 mA·h·g⁻¹)^[3-5], 成为锂金属电池中的关键材料。然而金属锂负极却面临着一系列难题, 其中之一是与有机电解质接触时会自发发生副反应, 从而在金属锂表面上生成固体电解质界面膜(SEI)^[6-8]。不幸的是, 在循环过程中原位生成的 SEI 在绝大多数时候都是不均匀的, 且内部机械结构不稳定, 柔韧性有限, 因此在锂离子(Li⁺)迁移时会不均匀的沉积在锂负极表面, 致使生成死锂和锂枝晶。而尖锐的锂枝晶会刺穿隔膜, 使正负极短路, 从而引起严重的安全问题。同时这种不均匀的沉积会导致电解质持续被损耗, 进而导致库仑效率下降和电池容量急剧衰减^[9-10]。这些问题在高正极面载量的条件下尤为突显, 严重制约了锂金属电池的商业化应用。

面对这些问题, 部分研究人员将成膜的添加剂

加入到电解液中, 例如氟化碳酸乙烯酯(FEC)、硝酸锂(LiNO₃)、碳酸亚乙烯酯(VC)等^[11-13]。使用电解液添加剂的方法, 在电池循环过程中可以消耗添加剂促进在负极表面形成结构稳定的 SEI^[14-16]。在理想条件下, SEI 的结构必须具备多种特性来确保电池的循环。首先它必须具备化学稳定性, 以防止循环过程中电解质与金属锂接触产生的副反应; 其次, 它需要具备 Li⁺的高导电性, 以确保 Li⁺的均匀传输; 同时它还要具备机械稳定性, 以适应在循环过程中不能忽略的体积变化^[7, 17]。迄今为止, 各种人工 SEI 已经成功的被应用在金属锂负极的改性中, 包括无机材料(例如, 磷酸锂 Li₃PO₄、氟化锂 LiF、二氧化硅 SiO₂ 和三氧化二铝 Al₂O₃ 等)^[18-21]和有机聚合物(例如, 聚丙烯酸 PAA、聚二甲基硅氧烷 PDMS、聚乙二醇 PEG 等)^[22-25]。其中无机人工 SEI 的 Li⁺电导率通常比较高, 但是弹性较差, 而且无机粒子无法致密地覆盖金属锂负极, 难以屏蔽电解液对金属锂的腐蚀。有机聚合物人工 SEI 具有优异的弹性, 但是 Li⁺电导率较低, 影响 Li⁺在循环中的均匀传输。通常聚合物是通过溶解或者加热聚合的方

收稿日期: 2024-01-23。 修订日期: 2024-02-09。

基金项目: 吉林省科学技术厅项目(YDZJ202201ZYTS304)。

第一作者: 卢 微(1990—), 女, 博士, 讲师。

通信作者: 刘 梅(1976—), 女, 博士, 教授;

冯 明(1981—), 男, 博士, 教授。

Received date: 2024-01-23. Revised date: 2024-02-09.

First author: LU Wei (1990—), female, Ph.D., Lecturer.

E-mail: luwei@jlnu.edu.cn;

Correspondent author: LIU Mei (1976—), female, Ph.D., Professor.

E-mail: liumei@jlnu.edu.cn

Correspondent author: FENG Ming (1981—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: mingfeng@jlnu.edu.cn

法简单的涂布在金属锂表面, 无法与金属锂负极紧密接触, 会导致在循环中电解液渗入而与金属锂发生副反应^[26–27]。而原位紫外光聚合的方法可以使人工 SEI 紧密地生长在金属锂表面, 有效抑制电解液接触金属锂发生的副反应。并且紫外光聚合方法是通过汞灯发射具有高能量的紫外光源, 能够快速激发聚合物单体的不饱和键聚合, 缩短聚合反应时间, 提高规模化生产人工 SEI 的效率。

为了探究聚合物人工 SEI 对金属锂负极的保护作用, 我们利用原位紫外光聚合的方法在金属锂表面原位生成一层具有高弹性、高 Li^+ 电导率且与金属锂紧密接触的聚乙二醇二丙烯酸酯(PEGDA)与 VC 的共聚物人工 SEI(EP-SEI)。PEGDA 和 VC 可以共溶在乙二醇二甲醚(DME)中形成一种无色的溶剂, 这种无色的溶剂与金属锂接触性良好, 可均匀涂布且厚度可调节。EP-SEI 通过原位紫外光聚合反应生成于金属锂表面, 通过一定的电化学反应后达到一个稳定的结构。通过这种原位聚合的方法可以使 EP-SEI 紧密地包裹在金属锂表面, 在锂金属电池循环过程中有效防止了电解液与金属锂的接触产生的副反应, 减少了电解液的损耗, 进而提高库伦效率。交联聚合而成的聚合物能够减少 EP-SEI 的结晶度, 提高 Li^+ 电导率, 促进 Li^+ 在金属锂表面均匀且迅速的剥离/沉积, 进而提高倍率性能。此外, EP-SEI 具有较高的弹性和拉伸性能, 在锂剥离/沉积过程中可以有效减缓锂的体积变化, 可以持续稳定金属锂负极, 增加循环寿命。尤为关键的是我们使用的原位紫外光聚合方法操作简单, 在低露点条件下经过混浆、涂覆、光照、烘干四步过程, 可以适配目前锂电池正负极涂覆产线的条件, 易于批量化生产, 进而促进锂负极以及锂金属电池的商业化推

广和应用。

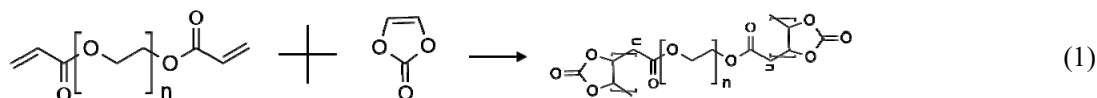
1 实验

1.1 材料与试剂

聚乙二醇二丙烯酸酯(PEGDA), 平均分子量 1 000, 阿拉丁试剂; 碳酸亚乙烯酯(VC), 质量分数 98%, 阿拉丁试剂; 乙二醇二甲醚(DME), 分析纯, 阿拉丁试剂; 2-羟基-2-甲基苯丙酮(HMPP), 质量分数 97%, 阿拉丁试剂; 聚偏二氟乙烯(PVDF), 分析纯, 上海麦克林生化科技有限公司; N-甲基吡咯烷酮(NMP), 纯度 99.5%, 阿拉丁试剂; 涂碳铝箔, 电池级, 北京有色金属研究所; 1.0 mol/L 的 LiPF_6 , 溶剂体积比为 $V(\text{EC}):V(\text{DEC})=1:1$ 的电解液, 电池级, 广州天赐高新材料科技有限公司; 聚丙烯微孔隔膜, 电池级, 星源材质科技股份有限公司; 金属锂片, 电池级, 天津中能锂业有限公司; 扣式电池组件, CR2025, 新威研选科研采购平台; 高纯氩气, 纯度 99.999%, 长春巨洋气体有限责任公司。

1.2 EP-SEI 的制备

在一个小瓶中加入 80 mg PEGDA 和 20 mg VC 搅拌 1 h, 随后加入 2 mL DME 搅拌 1 h。搅拌均匀后加入 0.2 mL HMPP 后再次搅拌 20 min, 即可得到分散液。在氩气手套箱中, 称取 15 μL 分散液均匀涂抹在金属锂片表面。随后将涂了分散液的金属锂片在低露点($-40\text{ }^\circ\text{C}$)的条件下放置在紫外光照灯下光照 10 min 得到 EP-SEI 保护的金属锂片。我们将经过紫外光照聚合的 EP-SEI 保护的金属锂负极在室温下放置在手套箱中静置 12 h, 使 DME 溶剂完全挥发, 最后得到干燥的 EP-SEI 保护的金属锂。聚合物交联的反应如下所示:



式中, PEGDA 分子中的两个双键分别与 VC 环内断裂的双键发生聚合反应, 最终形成 PEGDA-co-VC 共聚物(EP-SEI)。同时汞灯源的紫外光提供反应所需的能量。图 1 为制备过程和锂沉积示意图。

1.3 电池组装与电化学性能测试、材料表征

正极制备质量比为: $m(\text{LiFePO}_4(\text{LFP})):(\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2(\text{NCM811})):m(\text{Super P}):m(\text{PVDF})=8:1:1$, 研磨后加入 NMP 继续研磨成浆料, 涂布在含碳铝箔上, $120\text{ }^\circ\text{C}$ 真空烘干 12 h, 裁为直径 13 mm 的圆片。

电池组装: 以 LFP、NCM811 为正极, 金属锂

为负极, 采用 PP 隔膜, 滴加 1 mol/L LiPF_6 , EC/DEC 电解液, 在充满氩气手套箱(SG2400/750TS, H_2O 和 $\text{O}_2<0.1\times 10^{-6}$)内组装 CR2025 扣式电池。

成核过电位(μ_{nuc})和平台电位(μ_{pla})的计算: 平台电位(μ_{pla})从 $\text{Li} \parallel \text{Cu}$ 的电化学曲线平台的绝对值得到, EP-SEI Cu 和 Bare Cu 分别为 79.3 mV 和 98.3 mV。成核过电位(μ_{nuc})由 $\text{Li} \parallel \text{Cu}$ 的电化学曲线最低电压(EP-SEI Cu 和 Bare Cu 分别为 154.6 mV 和 198.7 mV)与平台电位的差值得到, EP-SEI Cu 和 Bare Cu 的 μ_{nuc} 分别为 75.3 mV 和 100.4 mV。

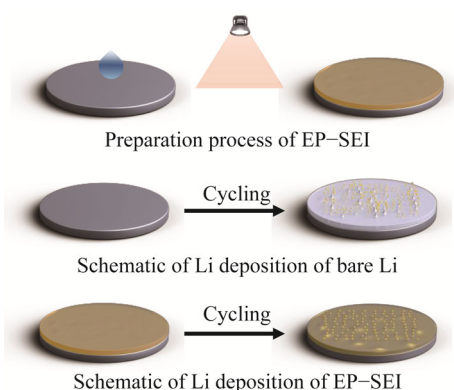


图 1 EP-SEI 保护的锂的制备过程及锂沉积的示意图

Fig. 1 Schematic of EP-SEI Li preparation process and Li deposition

使用傅里叶红外光谱仪(Nicolet iS50 FT-IR)在 $800\text{--}3\,200\text{ cm}^{-1}$ 对 PEGDA-co-VC 进行结构组分分析。使用扫描电子显微镜(SEM, S-5500, Hitachi)和能量色散 X 射线(EDX)来检查所制备的微结构和形貌。使用电化学工作站(1470E, Solartron)在 $10^{-1}\text{--}10^6\text{ Hz}$ 的频率范围内进行电化学阻抗谱(EIS)。对称电池的循环伏安曲线(CV)以 $0.2\text{ mV}\cdot\text{s}^{-1}$ 的扫描速率在 $-0.2\text{--}0.2\text{ V}$ 范围内测试。使用新威尔电池测试系统(BTS-5 V, 10 mA)以恒定电流密度为 $1\text{ mA}\cdot\text{cm}^{-2}$, 恒定容量密度为 $1\text{ mA}\cdot\text{h}\cdot\text{cm}^{-2}$ 为测试条件对锂对称电池进行循环测试, 以 0.5 C 倍率为条件测试 LFP、NCM811 全电池。

2 结果与讨论

2.1 EP-SEI 的结构与形貌表征

通过原位紫外光聚合的方法, 在金属锂表面制备了一层具有高弹性的 PEGDA-co-VC 人工 SEI(EP-SEI)。为了确定制备后 EP-SEI 的聚合物组成, 首先对其进行了 FTIR 光谱的测试, 对 EP-SEI 的结构进行了分析(见图 2a)。利用 FTIR 光谱的测试, 验证了 EP-SEI 合成前的单体结构以及单体在紫外光交联时是否完全发生共聚反应, 还有 EP-SEI 在经过电化学反应后的组成成份变化。PEGDA 单体和 VC 单体以及合成后的 EP-SEI 的 FTIR 光谱结果显示, PEGDA 单体和 VC 单体分别在大约 $1\,720\text{ cm}^{-1}$ 处和 $1\,790\text{ cm}^{-1}$ 处有 $\text{C}=\text{O}$ 的伸缩振动峰。在 $1\,110\text{ cm}^{-1}$ 和 $2\,870\text{ cm}^{-1}$ 处分别是 $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ 和 $-\text{CH}_2$ 的伸缩振动峰, 它们都来源于 PEGDA 的化学结构。通过紫外光交联后的 EP-SEI 同时也观测到这两处的特征峰, 说明在合成后这两官能团未参与反应。VC 单体和 PEGDA 单体的 $\text{C}=\text{C}$ 双键的特征峰分别处在 $1\,560\text{ cm}^{-1}$ 和 $1\,620\text{ cm}^{-1}$ 的位置上^[28-29]。而 EP-SEI 的

FTIR 谱中未出现 $\text{C}=\text{C}$ 双键特征峰, 表明 VC 单体与 PEGDA 单体在紫外光交联的方法下成功共聚, 制备出了 PEGDA-co-VC 聚合物。这两种有机单体交联生产的共聚物可以提高 EP-SEI 结构的无序度, 进而提高 EP-SEI 的锂离子电导率^[30]。并且交联形成的聚合物结构稳定, 具有较高的弹性、柔韧度和拉伸性能, 能够减缓锂负极的体积膨胀。在此基础上, 我们也将经过循环后的 EP-SEI 进行了 FTIR 测试, 验证其化学结构的变化。图中可以观察到循环后的 EP-SEI 的 FTIR 谱上在 $1\,790\text{ cm}^{-1}$ 处本应是 VC 的 $\text{C}=\text{O}$ 的伸缩振动峰消失, 而在 $1\,650\text{ cm}^{-1}$ 处发现一个归属于 ROCOOLi 的特征峰。这个结果说明了在电化学循环过程中 EP-SEI 中富含的 $-\text{COO}-$ 官能团可以与锂发生化学反应, 生成 ROCOOLi^[31-32]。这种锂化的基团(ROCOOLi)可以增加 EP-SEI 与金属锂负极之间的接触, 同时为 Li^+ 提供传输通道, 进而促进了 Li^+ 在金属锂表面的均匀沉积^[30]。

确定了 EP-SEI 的化学结构后, 将 PEGDA-co-VC 聚合物单独成膜进行了拉伸性能的测试。图 2b 为拉伸应力应变曲线。从图 2b 可以得出 PEGDA-co-VC 聚合物的拉伸强度约为 5.94 MPa , 并且达到最大拉伸力后随着拉伸力的减弱仍然存在应变率直到 48% 为止, 说明该膜具有一定的拉伸屈服应力, 证明以 PEGDA-co-VC 聚合物作为人工 SEI 具有一定的弹性, 可以缓冲锂体积膨胀。随后又进行 SEM 测试, 分析了 EP-SEI 的形貌。由图 2c~图 2e 可见, 从 EP-SEI 的俯视 SEM 图(见图 2f)中可以观察到表面呈现均匀且致密的形貌, 这表明 EP-SEI 在金属锂表面成膜性良好。从 EP-SEI 的横截面 SEM 图和碳(C)、氧(O)EDS 图(见图 2c~图 2e)中可以观察到 EP-SEI 内部均匀地分散着 C 和 O 且厚度约为 $1.6\text{ }\mu\text{m}$, 紧密地覆盖在金属锂表面。这种 EP-SEI 与金属锂负极之间紧密的接触得益于原位紫外光交联合成的方法, 可以有效减少电解液与金属锂的接触, 降低电解液的消耗和死锂的生成。此外, 将组装的磷酸铁锂(LiFePO_4) || EP-SEI Li 全电池经过 20 次循环后进行拆解, 对 EP-SEI Li 进行了 SEM 俯视图的表征(见图 2g)。从图中显示出经过循环后的 EP-SEI 依然保持完整的均匀形貌, 未发生破裂且无锂枝晶生成。从图 2 的 FTIR 和 SEM 测试可以证明成功地在金属锂表面制备了一层具有高弹性、均匀致密的交联聚合物 EP-SEI, 该 EP-SEI 的厚度仅为 $1.6\text{ }\mu\text{m}$ 可以紧密地覆盖在金属锂表面, 有效地保护金属锂负极。

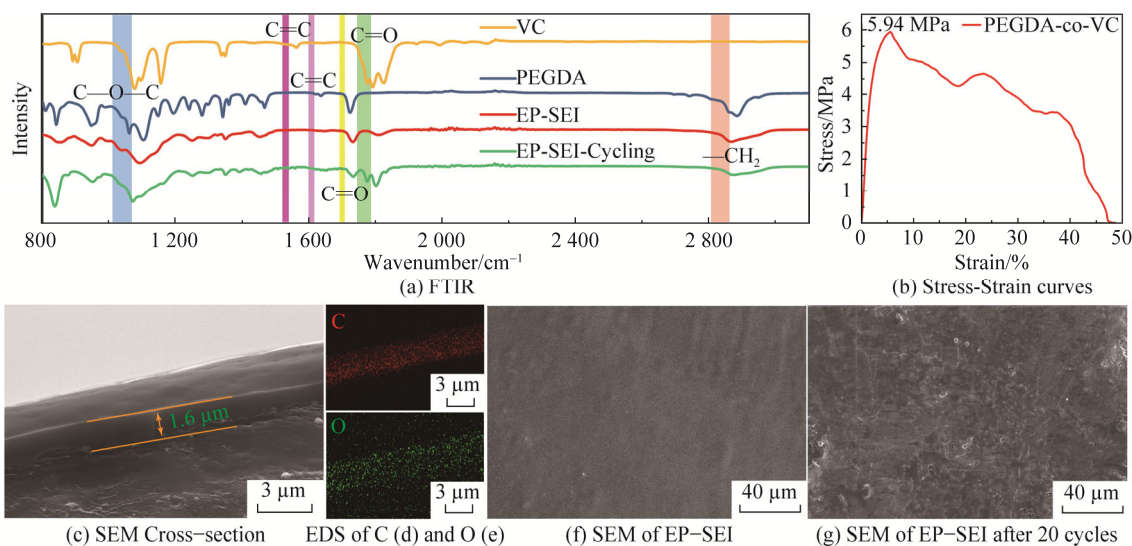


图2 弹性聚合物人工固态电解质界面膜(EP-SEI)的结构、拉伸性能及形貌表征

Fig. 2 Structure-tensile property and morphology characterization of EP-SEI

2.2 EP-SEI 的 Li || Li 和 Li || Cu 电池的性能的 研究

为了探究 EP-SEI 的化学反应动力学, 将 EP-SEI 保护的金属锂(EP-SEI Li)和未保护的裸锂(Bare Li)在少量(添加量为: 每个电池 20 μL , 10 $\mu\text{L} \cdot \text{mA} \cdot \text{h}^{-1}$)碳酸酯电解液条件下(1 mol/L LiPF_6 溶解在 EC/DEC)组装了锂对称(Li || Li)电池和锂铜(Li || Cu)电池进行电化学测试(见图 3)。用 EP-SEI Li 和 Bare Li 组装的 Li || Li 电池进行了循环伏安(CV)测试, 并通过计算得到 Tafel 曲线(见图 3a 和图 3b)。

由图 3a 可见, EP-SEI 组装的电池在 0.2 $\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$ 扫描速度下的 CV 曲线展现了典型的中心对称回路, 说明 EP-SEI 保护的金属锂具有高度可逆的电化学行为^[33]。与 Bare Li 组装电池的 CV 曲线相比, EP-SEI 保护的金属锂组装的电池的 CV 曲线展现了更高的响应电流, 这可能是由于在循环过程中 EP-SEI 提供了更高的电荷转移速率。图 3b 为两种电池对应的 Tafel 斜率, EP-SEI 电池的交换电流密度($0.61 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$)远高于裸锂电极($0.16 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$), 表明 EP-SEI 能够提供更快的电荷转移速率^[33]。

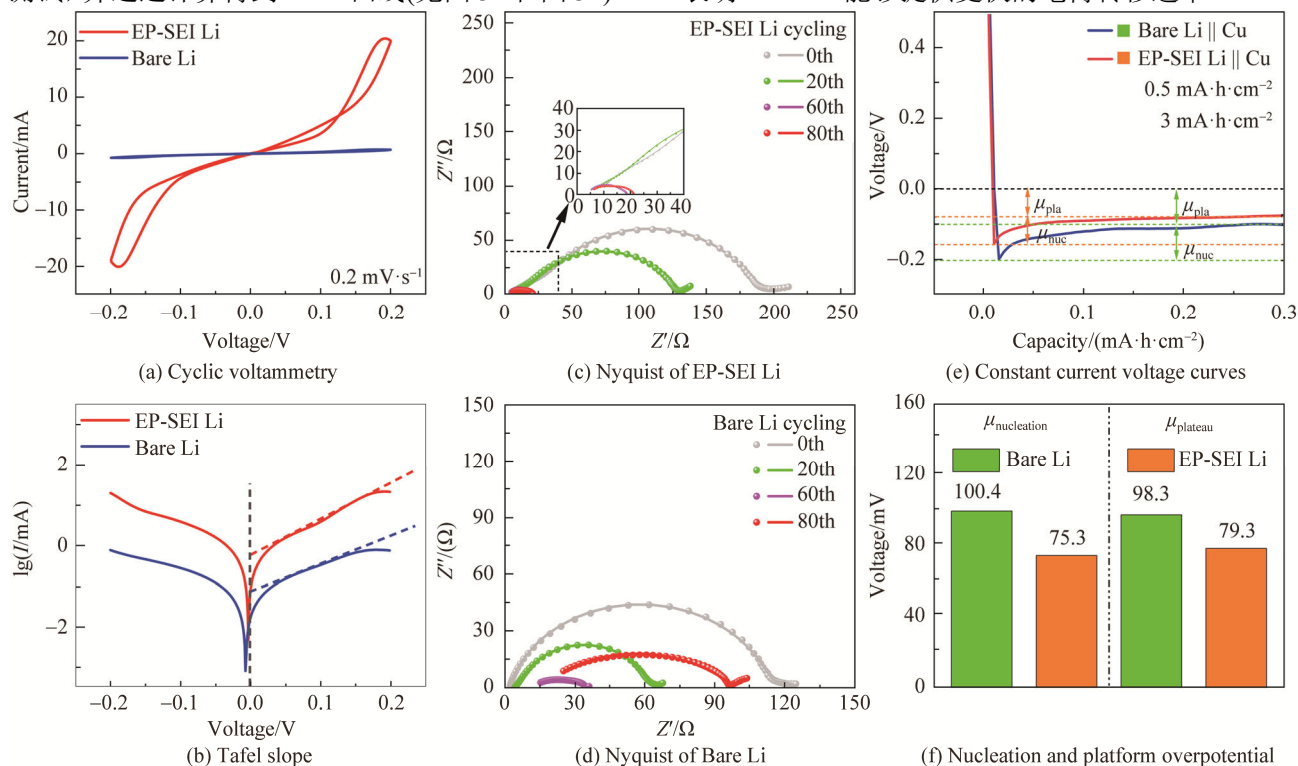


图3 EP-SEI 保护的锂和裸锂的电化学性能

Fig. 3 Electrochemical properties of EP-SEI Li and Bare Li

通过 Li || Li 电池(测试条件为电流密度: $1 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$, 容量: $1 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{cm}^{-2}$)的 Nyquist 谱进一步探究 EP-SEI 和裸锂自生成的 SEI 的阻抗(见图 3c 和图 3d)。图 3c 为 EP-SEI 保护的金属锂对称电池在不同循环圈数的阻抗值, 能够看出在循环次数增加时, 阻抗值在逐渐减少, 直到 60 圈后阻抗值达到稳定约为 15Ω 。这个结果说明 EP-SEI 在循环过程中逐渐与金属锂达到界面稳定的状态, 达到稳定后界面未发现显著变动。图 3d 为 Bare Li 对称电池在不同循环圈数的阻抗值, 阻抗值随着循环圈数的增加经历了先变小后增大(60 圈先减小至 16.4Ω , 后 80 圈突然增大至 73.8Ω), 这是由于刚组装完的电池经历电解液浸润电极的阻抗值减小的过程, 当界面稳定后持续生成的 SEI 使得阻抗值不断增大。经过交流阻抗的测试证明了 EP-SEI Li 在循环过程中具有较高的稳定性, 并且有着较高的锂离子电导率, 而未经保护的 Bare Li 在循环过程中会持续生成 SEI 而增加阻抗值进而影响电化学性能^[6, 34]。

为了进一步探究锂的沉积活动, 对 EP-SEI 保护和未保护的铜(Cu)组装了 Li || Cu 对电池进行电化学测试, 探究 Li^+ 在 Cu 表面沉积的电化学动力学。图 3e 为 EP-SEI Cu 和 Bare Cu 组装的 Li || Cu 对电池在恒定电流密度为 $0.5 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$, $3 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的

固定容量条件下电压随容量变化的曲线, 从曲线的最低点我们可以观察到 EP-SEI Cu 具有更小的成核过点位和稳定的沉积电化学平台。图 3f 总结了两种电池在锂沉积过程中观察到的过电位分别为成核过电位(μ_{nuc})和平台电位(μ_{pla})。EP-SEI Cu 电极的 μ_{nuc} 和 μ_{pla} 均明显低于 Bare Cu 电极, 该结果得益于较低的成核能垒和较快的电荷转移, 表明了经过循环 EP-SEI 传输 Li^+ 的电阻较低, 进一步证明了 EP-SEI 具有快速且均匀的 Li^+ 传输速率^[35]。

随后将 EP-SEI Li 和 Bare Li 组装的 Li || Li 在少量电解液添加(每个电池 $20 \mu\text{L}$, $10.0 \mu\text{L} \cdot \text{mA} \cdot \text{h}^{-1}$)的条件下进行了长循环锂沉积性能的测试。由图 4a 可见, EP-SEI Li 对称电池在恒定电流密度为 $1 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$ 恒定容量密度为 $1 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的测试条件下, 可以稳定循环超过 300 h, 且一直维持 26 mV 的过电势。相反, Bare Li 对称电池初始约有 16 mV 的过电势, 此时这个数值低于 EP-SEI Li 对称电池。但循环 40 h 后就开始表现电压波动, 这说明 Bare Li 对称电池在循环中, Li^+ 的不均匀沉积导致锂枝晶生长和电解液腐蚀以及不断消耗, 进而导致电荷转移电阻增加^[9, 36]。图 4b 和图 4c 为 EP-SEI Li 和 Bare Li 的对称电池的电压时间曲线的详细变化, Bare Li 对称电池在前 25 次循环中呈现出比 EP-SEI Li 对称电池更

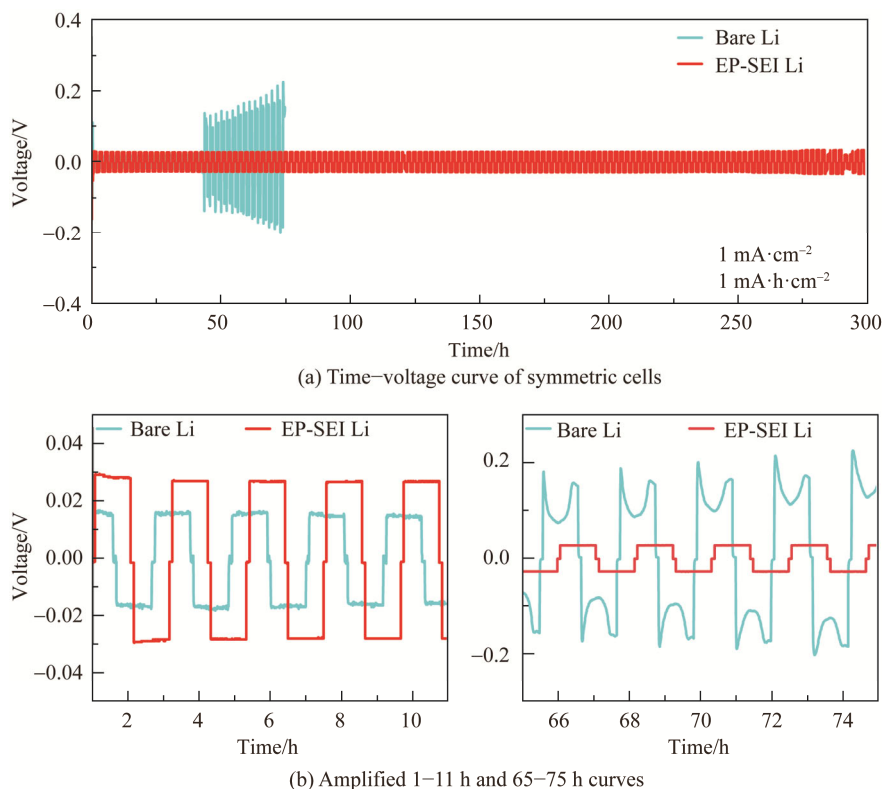


图 4 锂对称电池的性能测试

Fig. 4 Performance test of Li symmetric (Li || Li) batteries

低过电势,在后续循环中,Bare Li 对称电池开始发生电压波动,并且过电势逐渐超过 EP-SEI Li 对称电池。相反,EP-SEI Li 对称电池在 150 次(300 h)循环中保持稳定 26 mV 的过电势,这表明 EP-SEI 可以持续稳定有效的保护金属锂负极。结果证明,EP-SEI 不只化学结构稳定,并且电化学性能可靠,能够有效地防止电解液与金属锂接触产生副反应,同时减少锂枝晶和死锂的生成,提高循环性能。

同时为了方便观测在循环过程中人工 SEI 的保护情况,将 $3 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{cm}^{-2}$ 的 Li^+ 沉积在 EP-SEI Cu 和 Bare Cu 上进行俯视图和横截面的 SEM 测试(见图

5)。由图 5a 和图 5b 可见,EP-SEI Cu 的 Li 沉积表面是光滑平整的,未发现有锂枝晶生成,横截面 SEM 也发现其表面有大约 $24 \mu\text{m}$ 的锂沉积,这个数值接近理论沉积厚度。由图 5c 和图 5d 可见,Bare Cu 的表面有大量锂枝晶生成,特别是在 $5 \mu\text{m}$ 标尺下的 SEM 照片更显示出明显的针状锂枝晶,且横截面显示出 $36.5 \mu\text{m}$ 的锂枝晶厚度,远高于理论沉积厚度,结果表明在锂沉积过程中 EP-SEI 可以使 Li^+ 均匀沉积,有效抑制锂枝晶的生成^[37]。该结果得益于 EP-SEI 较低的成核能垒,与上文中成核过电位测试结果(见图 3e)相符。

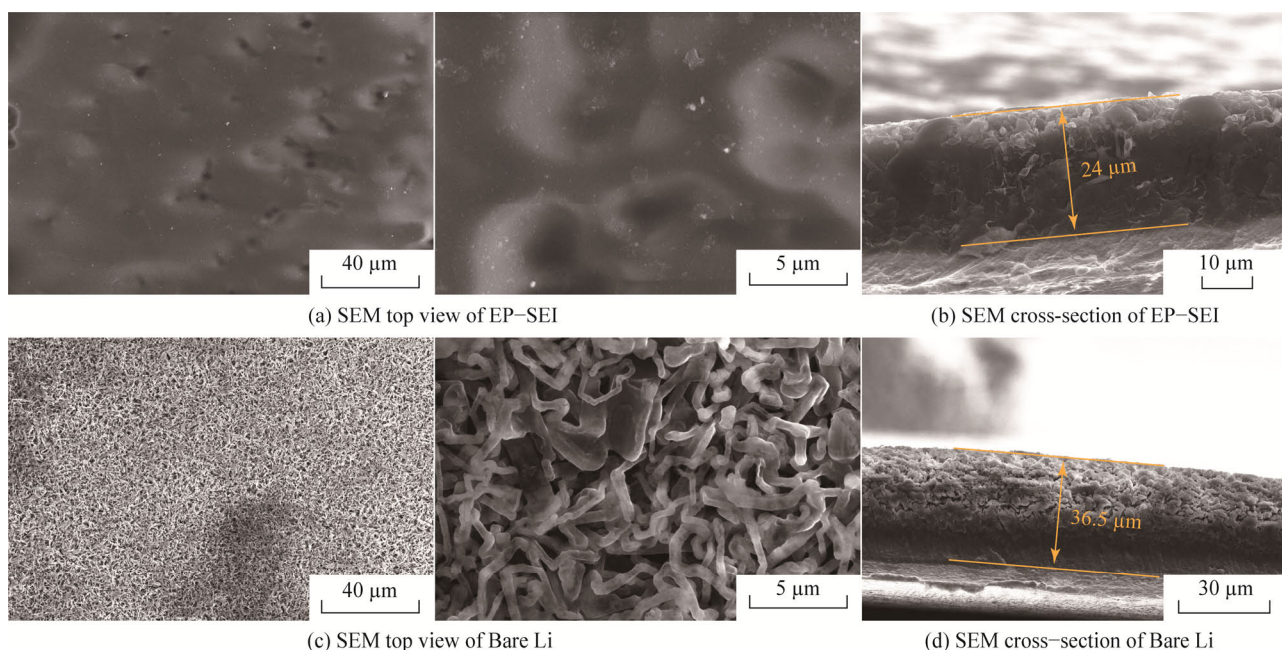


图 5 锂离子在铜表面沉积的 SEM 照片

Fig. 5 SEM images of Li^+ deposited on Cu surface

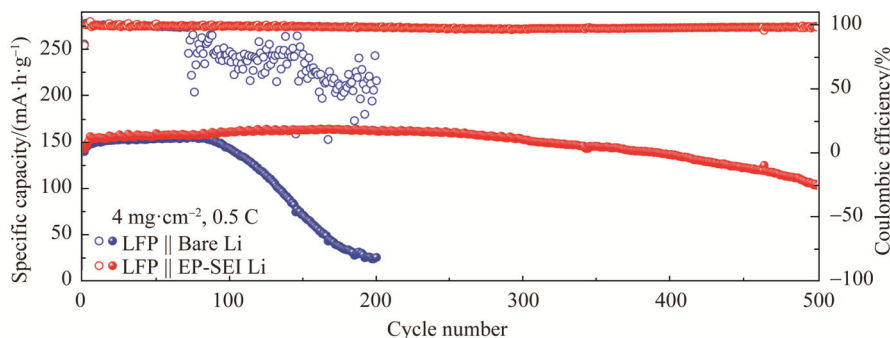
2.3 EP-SEI 的 $\text{LiFePO}_4 \parallel \text{Li}$ 和 $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2 \parallel \text{Li}$ 全电池的性能的研究

为了研究 EP-SEI Li 在全电池中的优势,正极选择了 LiFePO_4 (LFP, 面负载量 $4 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$, 面积容量 $0.67 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{cm}^{-2}$) 和 $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2$ (NCM811, 面负载量 $4 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$, 面积容量 $1.1 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{cm}^{-2}$) 分别进行了锂金属全电池的循环性能测试。在全电池仅添加 $30 \mu\text{L}$ 电解液条件下,以 0.5 C 倍率测试。图 6a 为 $\text{LFP} \parallel \text{Li}$ 全电池的电化学曲线, $\text{LFP} \parallel \text{EP-SEI Li}$ 电池首次循环比容量为 $142.8 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{g}^{-1}$, 放电比容量最高可达 $164.1 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{g}^{-1}$, 这可能是由于前期电池内部在进行活化而逐渐达到稳定状态。 $\text{LFP} \parallel \text{EP-SEI Li}$ 电池在 500 次循环后仍拥有 72% 的容量保持率,并且其库伦效率仍然为 98.5%。与此相反, $\text{LFP} \parallel \text{Bare Li}$ 电池库伦效率仅在第 72 次循环后就开始下降,容

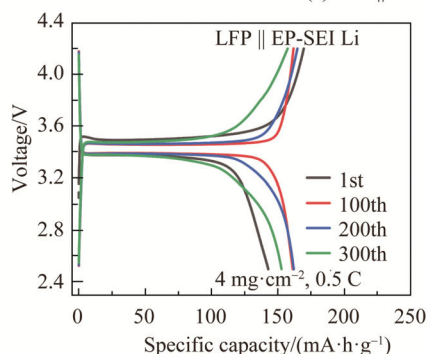
量也在 194 次循环后降到了 $26.2 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{g}^{-1}$, 这是由于因副反应原位生成的 SEI 并不稳固,循环中会持续的破裂重组,并持续损耗电解液,最后导致电解质耗尽、大量的锂枝晶和死锂的生成,进而导致电池内部短路,甚至发生安全隐患。结果证明了在金属锂表面构筑稳定的人工 SEI 可以为锂金属电池在循环中提供稳定的保障,因为它降低了电解液的损耗以及减少锂枝晶和死锂生成。图 6b 和图 6c 为 $\text{LFP} \parallel \text{Li}$ 全电池的容量电压变化曲线, $\text{LFP} \parallel \text{EP-SEI Li}$ 电池的过电势在前 300 次循环过程中一直维持在 0.1 V 左右,没有发生波动。 $\text{LFP} \parallel \text{Bare Li}$ 电池对应的容量电压曲线中,前 100 次循环的过电势变化不大,但充电电压曲线发生强烈的波动,可能是因为锂枝晶的生成,刺穿隔膜,导致正负极的短暂接触,形成微短路^[38–39]。随着循环的进行, Bare Li

组装的 LFP 全电池的过电势在 200 次循环增加到 0.37 V, 这是由于在循环中死锂不停的生成和 SEI

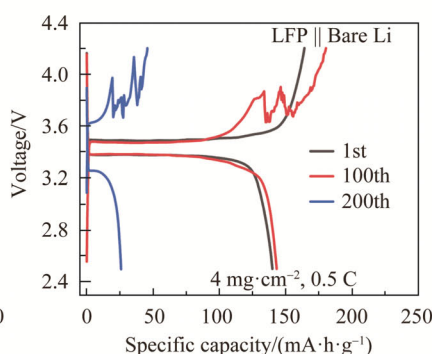
的破损重组不断消耗电解液, 导致了界面阻抗持续增加^[40]。



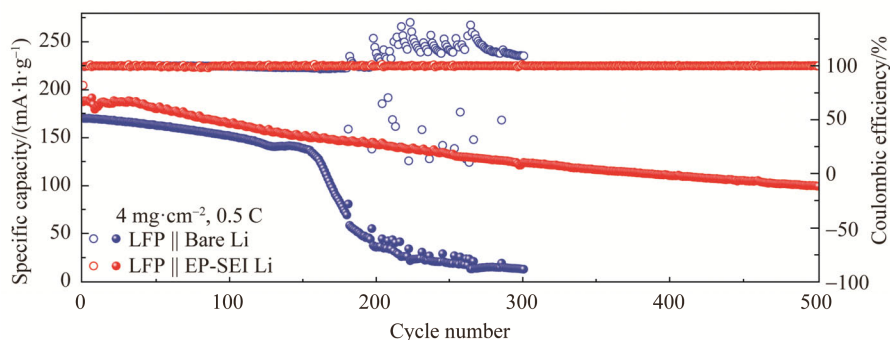
(a) LFP || Li Performance tests



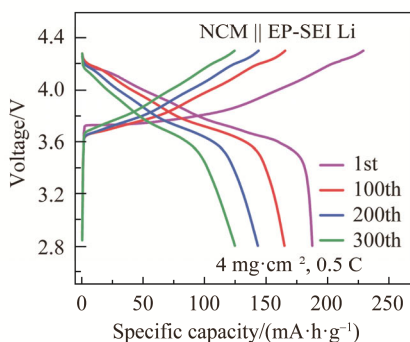
(b) Capacity voltage curves



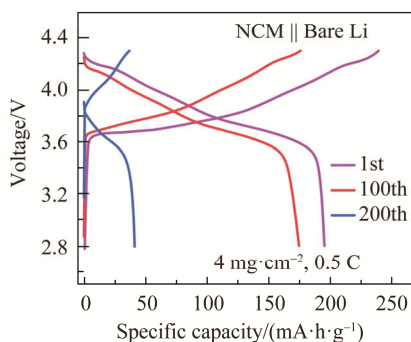
(c) Capacity voltage curves



(d) NCM || Li Performance tests



(e) Capacity voltage curves



(f) Capacity voltage curves

图 6 磷酸铁锂和三元锂(811)全电池的循环性能测试

Fig. 6 Cycling performance of LFP and NCM (811) full batteries

锂金属电池要想突破 $300 \text{ W} \cdot \text{h} \cdot \text{kg}^{-1}$ 的瓶颈, 发展 NCM || Li 全电池是必然的发展方向。相对比结构稳定的 LFP, NCM 正极材料面临更多的问题,

NCM811 材料的问题更是尤为突出。NCM 因其材料本身具有催化性以及其高电压平台的特点, 对电池的电解液以及金属锂有着更严格的要求。针对金属

锂负极, 要想匹配可商业化的高面载量 NCM 正极, 要求金属锂除了要解决锂不均匀沉积的问题, 还要适应更大的体积变化。因此, 制备出的高弹性 EP-SEI Li 针对这 2 个问题进行了研究。将 EP-SEI Li 在少量电解液添加(30 μL 每个电池, 实验室一般使用超 100 μL 每个电池)且正极材料面载量为 $4\text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ 的条件下组装成了 NCM811 || Li 全电池, 在 0.5 C 倍率条件下进行循环性能测试。由图 6d 可见, NCM811 || EP-SEI Li 电池的首次放电比容量为 $187.1\text{ mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$, 且经过 500 次循环后, 放电比容量仍然可以维持 $100\text{ mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$ 。而 NCM811 || Bare Li 电池的首次放电比容量为 $170.1\text{ mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$, 而在循环 155 圈后就断崖式下跌直到 300 圈时容量只剩下 $15\text{ mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$ 。说明在高正极面载量且低电解液添加量的条件下, NCM811 || Bare Li 电池由于锂膨胀、锂枝晶和死锂的生成, 以及电解液损耗, 导致电荷转移电阻增加, 活性 Li^+ 的剥离/沉积难度急剧上升, 进而电池失效。而我们制备的 EP-SEI 可以有效保护金属锂负极适应锂的体积膨胀, 一直锂枝晶和死锂的生成, 减少电解液的损耗从而增加 NCM811 锂金属电池的循环寿命。我们的高弹性的 EP-SEI 的设计为解决锂金属电池制约实际商业化应用的正极高面载量和少量电解液添加存在的问题提供了新的机遇。

3 结论

通过原位紫外光照聚合的方法将 PEGDA 与 VC 共聚在金属锂表面, 制备出高弹性的 EP-SEI 用于保护高比能锂金属电池中的金属锂负极。这种人工 SEI 具有高弹性、高 Li^+ 电导率、结构稳定以及与锂接触紧密的特点, 有效地解决了锂金属负极的膨胀粉化、锂枝晶和死锂等严重影响锂金属电池实际应用的循环和安全性问题。EP-SEI Li 对称电池在恒定电流密度为 $1\text{ mA}\cdot\text{cm}^{-2}$ 和恒定容量密度为 $1\text{ mA}\cdot\text{h}\cdot\text{cm}^{-2}$ 的条件下可以稳定循环超 300 h。LFP || EP-SEI Li 全电池在 0.5 C 倍率下在少量电解液添加(30 μL 每个电池)条件下循环 500 圈后仍然可以保留 $103.4\text{ mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$ 的放电比容量。而 NCM811 || EP-SEI Li 全电池在 0.5 C 倍率下在少量电解液添加(30 μL 每个电池)条件下循环 500 圈后仍然可以保留 $100\text{ mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$ 放电比容量。此外 EP-SEI 制备方法简单, 适合大规模商业化制备, 有望成为开发高稳定、长循环的锂金属电池的一种有效解决方案。

参考文献:

- [1] YU Y M, XU H, CHENG J P, et al. Which type of electric vehicle is worth promoting mostly in the context of carbon peaking and carbon neutrality? A case study for a metropolis in China[J]. *Sci Total Environ*, 2022, 837: 155626.
- [2] LAI X, CHEN Q W, TANG X P, et al. Critical review of life cycle assessment of lithium-ion batteries for electric vehicles: A lifespan perspective[J]. *eTransportation*, 2022, 12: 100169.
- [3] WANG H, YU D D, KUANG C W, et al. Alkali metal anodes for rechargeable batteries[J]. *Chem*, 2019, 5(2): 313–338.
- [4] ZHANG X, YANG Y A, ZHOU Z. Towards practical lithium-metal anodes[J]. *Chem Soc Rev*, 2020, 49(10): 3040–3071.
- [5] 杨梅, 陈奕妃, 刘红雷, 等. 去顶角八面体 $\text{LiFe}_{0.12}\text{Mn}_{1.88}\text{O}_4$ 正极材料制备及电化学性能[J]. *硅酸盐学报*, 2022, 50(7): 1865–1874. YANG Mei, CHEN Yifei, LIU Honglei, et al. *J Chin Ceram Soc*, 2022, 50(7): 1865–1874.
- [6] ADENUSI H, CHASS G A, PASSERINI S, et al. Lithium batteries and the solid electrolyte interphase (SEI)—Progress and outlook[J]. *Adv Energy Mater*, 2023, 13(10): 2203307.
- [7] XU R, CHENG X B, YAN C, et al. Artificial interphases for highly stable lithium metal anode[J]. *Matter*, 2019, 1(2): 317–344.
- [8] AURBACH D, ZABAN A, GOFER Y, et al. Recent studies of the lithium-liquid electrolyte interface Electrochemical, morphological and spectral studies of a few important systems[J]. *J Power Sources*, 1995, 54(1): 76–84.
- [9] LI B R, CHAO Y, LI M C, et al. A review of solid electrolyte interphase (SEI) and dendrite formation in lithium batteries[J]. *Electrochem Energy Rev*, 2023, 6(1): 7.
- [10] YU Z A, CUI Y, BAO Z N. Design principles of artificial solid electrolyte interphases for lithium-metal anodes[J]. *Cell Rep Phys Sci*, 2020, 1(7): 100119.
- [11] PENG Z, CAO X, GAO P Y, et al. High-power lithium metal batteries enabled by high-concentration acetonitrile-based electrolytes with vinylene carbonate additive[J]. *Adv Funct Mater*, 2020, 30(24): 2001285.
- [12] CUI C Y, YANG C Y, EIDSON N, et al. A highly reversible, dendrite-free lithium metal anode enabled by a lithium-fluoride-enriched interphase[J]. *Adv Mater*, 2020, 32(12): e1906427.
- [13] YAN C, YAO Y X, CHEN X, et al. Lithium nitrate solvation chemistry in carbonate electrolyte sustains high-voltage lithium metal batteries[J]. *Angew Chem*, 2018, 130(43): 14251–14255.
- [14] KOZEN A C, LIN C F, PEARSE A J, et al. Next-generation lithium metal anode engineering via atomic layer deposition[J]. *ACS Nano*, 2015, 9(6): 5884–5892.
- [15] XU Y L, DONG K, JIE Y L, et al. Promoting mechanistic understanding of lithium deposition and solid-electrolyte interphase (SEI) formation using advanced characterization and simulation methods: Recent progress, limitations, and future perspectives[J]. *Adv Energy Mater*, 2022, 12(19): 2200398.
- [16] 王鸣, 方鹏飞, 都亮, 等. 锂离子电池负极用多孔碳包覆 $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ 复合材料的制备及电化学性能[J]. *硅酸盐学报*, 2022, 50(2): 364–371. WANG Ming, FANG Pengfei, DU Liang, et al. *J Chin Ceram Soc*, 2022, 50(2): 364–371.
- [17] CHENG X B, ZHANG R, ZHAO C Z, et al. A review of solid electrolyte interphases on lithium metal anode[J]. *Adv Sci*, 2015, 3(3): 1500213.

- [18] LI N W, YIN Y X, YANG C P, et al. An artificial solid electrolyte interphase layer for stable lithium metal anodes[J]. *Adv Mater*, 2016, 28(9): 1853–1858.
- [19] PATHAK R, CHEN K, GURUNG A, et al. Ultrathin bilayer of graphite/SiO₂ as solid interface for reviving Li metal anode[J]. *Adv Energy Mater*, 2019, 9(36): 1901486.
- [20] GUO J C, TAN S J, ZHANG C H, et al. A self-reconfigured, dual-layered artificial interphase toward high-current-density quasi-solid-state lithium metal batteries[J]. *Adv Mater*, 2023, 35(24): e2300350.
- [21] WANG L P, ZHANG L, WANG Q J, et al. Long lifespan lithium metal anodes enabled by Al₂O₃ sputter coating[J]. *Energy Storage Mater*, 2018, 10: 16–23.
- [22] LI N W, SHI Y, YIN Y X, et al. A flexible solid electrolyte interphase layer for long-life lithium metal anodes[J]. *Angew Chem Int Ed Engl*, 2018, 57(6): 1505–1509.
- [23] SUN Y P, ZHAO Y, WANG J W, et al. A novel organic “polyurea” thin film for ultralong-life lithium-metal anodes via molecular-layer deposition[J]. *Adv Mater*, 2019, 31(4): 1806541.
- [24] MENG J W, CHU F L, HU J L, et al. Liquid polydimethylsiloxane grafting to enable dendrite-free Li plating for highly reversible Li-metal batteries[J]. *Adv Funct Mater*, 2019, 29(30): 1902220.
- [25] RONG Z L, SUN Y, YANG M, et al. How the PEG terminals affect the electrochemical properties of polymer electrolytes in lithium metal batteries[J]. *Energy Storage Mater*, 2023, 63: 103066.
- [26] LIU F, XIAO Q F, WU H B, et al. Fabrication of hybrid silicate coatings by a simple vapor deposition method for lithium metal anodes[J]. *Adv Energy Mater*, 2018, 8(6): 1701744.
- [27] 周国俊, 瞿翊帆, 李阿飞, 等. 氮掺杂富锂正极材料 Li_{1.2}Ni_{0.13}Co_{0.13}Mn_{0.54}O₂ 调控晶格[J]. *硅酸盐学报*, 2022, 50(10).
ZHOU Guojun, QU Yifan, LI Afei, et al. *J Chin Ceram Soc*, 2022, 50(10).
- [28] WANG H C, WANG Q, CAO X, et al. Thiol-branched solid polymer electrolyte featuring high strength, toughness, and lithium ionic conductivity for lithium-metal batteries[J]. *Adv Mater*, 2020, 32(37): e2001259.
- [29] JIANG F N, CHENG X B, YANG S J, et al. Thermoresponsive electrolytes for safe lithium-metal batteries[J]. *Adv Mater*, 2023, 35(12): e2209114.
- [30] LU Q W, YANG J, LU W, et al. Advanced semi-interpenetrating polymer network gel electrolyte for rechargeable lithium batteries[J]. *Electrochim Acta*, 2015, 152: 489–495.
- [31] OTA H, SAKATA Y, OTAKE Y, et al. Structural and functional analysis of surface film on Li anode in vinylene carbonate-containing electrolyte[J]. *J Electrochem Soc*, 2004, 151(11): A1778.
- [32] HE Y B, LIU M, HUANG Z D, et al. Effect of solid electrolyte interface (SEI) film on cyclic performance of Li₄Ti₅O₁₂ anodes for Li ion batteries[J]. *J Power Sources*, 2013, 239: 269–276.
- [33] LI S M, HUANG J L, CUI Y, et al. A robust all-organic protective layer towards ultrahigh-rate and large-capacity Li metal anodes[J]. *Nat Nanotechnol*, 2022, 17(6): 613–621.
- [34] MA J L, MENG F L, YU Y, et al. Prevention of dendrite growth and volume expansion to give high-performance aprotic bimetallic Li-Na alloy-O₂ batteries[J]. *Nat Chem*, 2019, 11(1): 64–70.
- [35] CUI C, ZHANG R P, FU C K, et al. Stable lithium anode enabled by biphasic hybrid SEI layer toward high-performance lithium metal batteries[J]. *Chem Eng J*, 2022, 433: 133570.
- [36] XU J R, LI J M, LI Y X, et al. Long-life lithium-metal all-solid-state batteries and stable Li plating enabled by *in situ* formation of Li₃PS₄ in the SEI layer[J]. *Adv Mater*, 2022, 34(34): e2203281.
- [37] SHEN X W, LI Y T, QIAN T, et al. Lithium anode stable in air for low-cost fabrication of a dendrite-free lithium battery[J]. *Nat Commun*, 2019, 10(1): 900.
- [38] CHOI J W, AURBACH D. Promise and reality of post-lithium-ion batteries with high energy densities[J]. *Nat Rev Mater*, 2016, 1(4): 16013.
- [39] XU W, WANG J L, DING F, et al. Lithium metal anodes for rechargeable batteries[J]. *Energy Environ Sci*, 2014, 7(2): 513–537.
- [40] KUSHIMA A, SO K P, SU C, et al. Liquid cell transmission electron microscopy observation of lithium metal growth and dissolution: Root growth, dead lithium and lithium flotsams[J]. *Nano Energy*, 2017, 32: 271–279.

Elastic Polymer Solid Electrolyte Interphase Protects Lithium Metal Anode

LU Wei^{1,2}, WANG Zihao^{1,3}, ZHAO Anshun^{1,3}, YU Mingxi^{1,3}, DU Mi^{1,3}, ZHAO Xue^{1,3}, ZHANG Wenjing^{1,3}, LIU Mei³, FENG Ming^{1,3}

(1. Key Laboratory of Functional Materials Physics and Chemistry Ministry of Education, Jilin Normal University, Changchun 130103, China; 2. College of Information Technology, Jilin Engineering Research Center of Optoelectronic Materials and Devices, Jilin Normal University, Siping 136000, Jilin, China; 3. College of Physics, Jilin Normal University, Siping 136000, Jilin, China)

Extended Abstract

Introduction Lithium metal batteries (LMBs) are regarded as candidates for next-generation batteries due to their low electrochemical potential (*i.e.*, −3.040 V vs. standard hydrogen electrode) and high theoretical specific capacity (*i.e.*, 3 860 mA·h·g^{−1}). Lithium (Li) metal anode is susceptible to side reactions with organic electrolytes, leading to the uneven formation of the solid electrolyte interphase (SEI). The non-uniformity and fragility of the SEI can aggravate the growth of Li dendrites and excessive electrolyte consumption, ultimately resulting in a rapid attenuation of capacity and safety risks. These issues severely hinder the commercialization of LMBs. The development of an artificial SEI is crucial for protecting Li metal anode, suppressing Li dendrite growth, and accommodating volume changes during cycling. This advancement is essential for improving the stability and cycling life of LMBs.

In this paper, we synthesized an artificial elastic polymer SEI (EP-SEI) constructed on the surface of Li metal anode by an *in-situ* UV-curing method. The main composition of EP-SEI was poly (ethyleneglycol) diacrylate-co-vinylene carbonate (PEGDA-CO-VC) cross-linking polymer.

Methods For the synthesis of an artificial elastic polymer SEI (EP-SEI) constructed on the surface of Li metal anode by an *in-situ* UV-curing method, polyethylene glycol diacrylate (PEGDA) and vinylene carbonate (VC) were mixed in a mass ratio of 4:1 (*i.e.*,

80 mg and 20 mg) under stirring. Afterwards, 2 mL of dimethoxyethane (DME) was added for dissolution. Subsequently, the mixture was dripped onto Li metal foils, followed by polymerization under a mercury lamp after the addition of 2-hydroxy-2-methylpropiophenone (HMPP). This method utilized UV light to rapidly excite the unsaturated bonds of polymer monomers, thereby shortening the polymerization reaction time and enhancing the preparation efficiency of the artificial SEI. This method was simple to operate, conducive to batch production, and aids in advancing the commercialization of LMB. The LMBs were assembled with LiFePO_4 (LFP) or $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2$ (NCM811) as a cathode material, Li metal foil as an anode, polypropylene (PP) as a separator, and 1 M LiPF_6 EC/DEC as an electrolyte. The batteries were assembled in a glove box filled with argon to ensure a moisture-free and oxygen-free environment during the process.

Results and discussion An artificial EP-SEI with PEGDA-co-VC was prepared on the surface of Li metal by an *in-situ* UV-curing polymerization method. The thickness of EP-SEI is 1.6 μm . The EP-SEI exhibits a uniform and dense morphology and tightly covers the surface of Li metal. In the results of electrochemical test, Li symmetric (Li || Li) cells assembled with EP-SEI protected Li exhibit highly reversible electrochemical behavior and faster charge transfer rates. The Li || Li cells with EP-SEI Li maintain stable cycling at a current density of 1 $\text{mA}\cdot\text{cm}^{-2}$ and a capacity density of 1 $\text{mA}\cdot\text{h}\cdot\text{cm}^{-2}$ for over 300 h. And the impedance values of Li || Li cells with EP-SEI Li continuously decrease during the cycle, and eventually stabilize at 15 Ω . This indicates that EP-SEI exhibits a high stability during prolonged electrochemical reactions and a high lithium ion conductivity. In the results of Li || Cu cells test, the low nucleation overpotential (μ_{nuc}) and plateau potential (μ_{pla}) indicate a reduction in the nucleation energy barrier for Li deposition. It is confirmed that EP-SEI can promote the uniform deposition of Li^+ on the surface of Li metal. After cycling of Li || Cu cell with EP-SEI Cu, the thickness of Li^+ deposition approaches the theoretical thickness. The surface of EP-SEI Cu remains smooth and flat without the growth of Li dendrites. In the results of full cell test, the LFP || Li batteries with EP-SEI Li exhibit a discharge specific capacity of 164.1 $\text{mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$ and a capacity retention rate of 72% after 500 cycles with a coulombic efficiency of 98.5% at 0.5 C rate. The NCM811 || Li batteries with EP-SEI Li maintain a discharge specific capacity of 100 $\text{mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$ after 500 cycles. This demonstrates that EP-SEI effectively reduces electrolyte consumption and improves coulomb efficiency, cycle stability and safety of LMBs.

Conclusions In this study, an elastic polymer artificial solid electrolyte interphase membrane (EP-SEI) was constructed on the Li metal anode by an *in-situ* UV-curing polymerization method. This EP-SEI exhibited excellent uniformity, stability and elasticity, promoting the uniform deposition of Li^+ during cycling. These properties indicated that EP-SEI could inhibit Li dendrite formation, buffer the volume changes of the Li metal anode, and reduce electrolyte consumption. The LFP || Li and NCM811 || Li batteries assembled with EP-SEI-protected Li metal anodes achieved discharge specific capacities of 164.1 $\text{mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$ and 187.1 $\text{mA}\cdot\text{h}\cdot\text{g}^{-1}$ at 0.5 C rate, respectively. The LMBs maintained stable cycling for 500 cycles. The EP-SEI could effectively protect the Li metal anode, improve the coulombic efficiency and extend the cycling life of LMB. The EP-SEI protected Li metal anode provided the possibilities for the commercialization of LMBs.

Keywords artificial solid electrolyte interphase; lithium metal anode; lithium metal battery; polymer; high elasticity

※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※ ※



冯明, 吉林师范大学物理学院, 二级教授, 博士生导师, 享受国务院政府特殊津贴专家, 吉林省高层次“B类人才”, 吉林省杰出青年科学基金获得者、首批吉林省“长白山领军人才”, 吉林省拔尖创新人才, 吉林省有突出贡献专家, 吉林省青年科技奖获得者。现任吉林省电池与光电催化电极材料国际联合研究中心主任, 兼任中国稀土学会固体科学与新材料专业委员会委员、中国感光学会光催化专业委员会委员、中国机械工程学会工程陶瓷专业委员会理事、吉林省松原市高端智库专家、“吉林省高校碳纤维(化工新材料)现代产业学院协作体”理事会副理事长、吉林省检测技术学会常务理事、吉林省物理学会理事、《Journal of Advanced Ceramics》、《Nano-Micro Letters》、《Advanced Powder Materials》、《Chinese Chemical Letters》、《Rare Metals》、《Battery Energy》、《Tungsten》、《硅酸盐学报》、《现代技术陶瓷》期刊编委/青年编委。在国内外学术刊物上发表研究论文 120 余篇, 获授权发明专利 10 余项。主要从事高比能二次电池关键材料开发与应用、外物理场耦合光电催化反应设计及其界面动力学研究。



卢微, 吉林师范大学信息技术学院, 讲师, 吉林省“E类人才”。在国内外学术刊物上发表研究论文 10 余篇, 获授权发明专利 2 项。主要研究方向为固态/半固态锂金属电池中金属锂负极保护及固态电解质的设计研究; 锂硫电池中隔膜、电解液及金属锂负极保护的设计研究。