



精准电镜观测揭示全固态电池空间电荷层的微观机理

来源: 科研部 发布时间: 2023-03-29 浏览次数: 40

3月24日, 国际著名学术期刊《Nature Communications》以“Atomic-scale study clarifying the role of space-charge layers in a Li-ion-conducting solid electrolyte”为题发表了中国科学技术大学马骋教授的最新研究成果。马骋教授团队通过球差校正电镜的原子尺度观测, 研究了空间电荷层对全固态锂电池中离子传输的影响, 并发现这一现象的微观机理和过往几十年的认知截然不同。

相比于目前的商业化锂离子电池, 全固态锂电池具有更好的安全性和更大的能量密度提升空间。在这种电池中, 空间电荷层可以产生于各种固-固界面附近; 只有深入理解了该现象对离子传输的影响, 才有可能有针对性的进行界面优化。在之前的文献报道中, 研究者普遍认为空间电荷层对离子迁移的影响只由锂离子的浓度决定: 锂离子浓度高则有利于离子迁移, 而锂离子浓度低则不利于离子迁移。这一认知存在两个问题。首先, 该理论所提及的锂离子浓度波动并未受到实验观测验证。其次, 锂离子的浓度改变常常会引起晶格扭曲、相变、锂离子/空位比例变化等一系列同样能显著影响固体中离子传输的因素, 因此整体离子传输效率不一定像文献中普遍认为的那样简单随锂离子浓度的升高而升高, 而是可能存在很复杂的相互关系。为了透彻的理解空间电荷层对离子传输的实际影响, 研究者需要对材料进行原子尺度的直接观测。

马骋教授团队发挥了球差校正透射电镜具有原子级分辨率的优势, 以 $\text{Li}_{0.33}\text{La}_{0.56}\text{TiO}_3$ 这一经典固态电解质的晶界作为研究对象, 揭示了空间电荷层对其离子传输的影响。在文献报道中, 研究者普遍认为该材料之所以会具有过大的晶界电阻, 是因为空间电荷层在晶界附近形成了锂离子浓度极低的区域, 从而限制了离子迁移效率。不同于这一认知, 马骋教授团队通过球差校正电镜观测发现晶界附近的锂离子浓度反而高于材料中的平均水平, 并且精准确定了这些多余锂离子在晶格中的位置。

在此基础上, 研究者结合理论计算和电化学测试, 发现这种晶体结构能实现相当高效的离子传输, 和文献中被普遍接受的假想截然相反。这一发现修正了研究者关于空间电荷层的认知, 也为全固态电池的界面优化提供了指导法则。

审稿人认为本工作“具有重大新意” (the novelty is substantial), 并且认为“(本工作所揭示的) 晶界附近细致的原子结构信息对于理解固态电解质的物理性质和性能是必不可少的” (The information on the detailed atomic structures near the grain boundary is essential for understanding the physical properties of the solid electrolyte and the performance)。

本论文的第一作者为中国科学技术大学博士生古震琦, 共同第一作者为中国科学技术大学博士后马家乐和博士生朱峰, 通讯作者为中国科学技术大学马骋教授和李震宇教授。该工作得到了中国科学院先导科技专项培育项目、科技部国家重点研发计划、国家自然科学基金、中国科学技术大学重要方向项目培育基金等项目的资助。

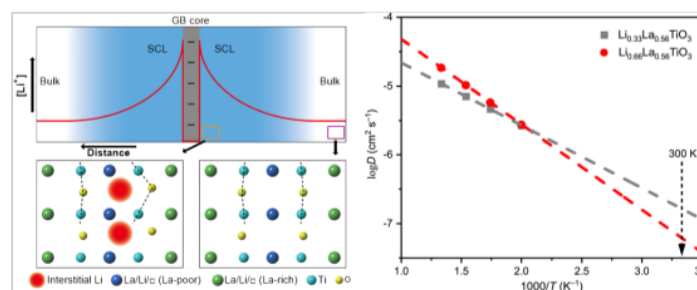


图1 空间电荷层的锂离子浓度分布、晶体结构和离子迁移效率

论文链接: <https://www.nature.com/articles/s41467-023-37313-2>

(合肥微尺度物质科学国家研究中心、化学与材料科学学院、科研部)



中国科学技术大学
University of Science and Technology of China

科研部

Copyright 2009-2020 中国科学技术大学科研部 All Rights Reserved.
电话: 0551-63601954 传真: 0551-63601795 E-mail: ustckjc@ustc.edu.cn
办公地址: 安徽省合肥市包河区金寨路96号中国科大东区老图书馆三楼 邮编: 230026



微信公众号



事业单位