

青岛能源所开发高压电解液构筑高能量密度锂电池体系

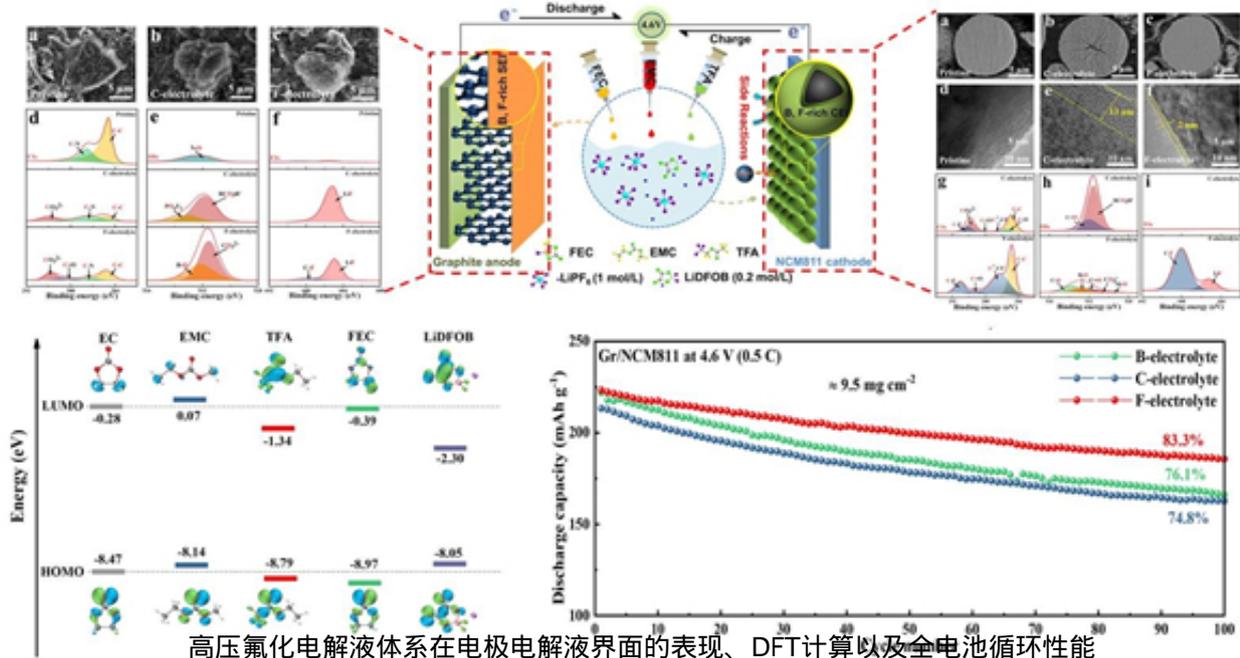
当前锂离子电池由于其出色的电化学性能广泛应用于电动汽车，正极材料是影响锂离子电池性能的关键因素之一，使用高比能正极材料（如NCM811）以及提高电池工作电压（>4.2V）是获得更高能量密度的最有效途径。然而，传统的碳酸酯基电解液无法适配高压电池体系，而且三元正极材料在高电压下会发生各种副反应，最终导致体系劣化、容量衰减。

中国科学院青岛生物能源与过程研究所研究员武建飞团队，多年来深耕正极材料及高性能电解液领域（ACS Appl. Mater. Interfaces 2020, 12, 49666；ACS Appl. Mater. Interfaces 2022, 14, 12264），近期在高电压电解液体系开发应用方面取得关键性进展，相关研究成果发表于《化学工程杂志》（Chemical Engineering Journal）。

研究团队开发了一种新型的高压氟化电解液体系，将NCM811正极材料的工作电压从4.2V提高到4.6V，拓展了三元体系的使用上限和应用范围，解决了两个重要问题：提高了高镍三元正极体系的比容量和工作电压，抑制NCM811正极在高电压下的结构相变、过渡金属离子溶出以及二次粒子的开裂，降低了极化，从而提高体系的能量密度和循环性能；构建了稳定的CEI和SEI，实现高负载量高镍三元体系电池在高电压下的可逆稳定循环。其中Li||NCM811半电池在4.6V工作电压下可以展现出247.2 mAh g⁻¹的高比容量，81.4%的循环容量保持率（0.5C 200圈）和154.5 mAh g⁻¹的高倍率比容量（5C）。同时，石墨||NCM811全电池在4.6 V循环100圈后仍然保留185.7 mAh g⁻¹的高比容量。

通过密度泛函理论（DFT）计算系统阐述了该高压电池体系性能提升的原因。氟取代基（-F）具有很强的吸电子作用，降低了溶剂的最高被占据分子轨道（HOMO），从而提高了电解液的氧化电位。在该体系中，正极表面的氟代溶剂（-F）如TFA和FEC

具有较低的HOMO能级，从而获得较高的氧化电位，有助于形成均匀的CEI膜。在负极表面，LiDFOB、FEC和TFA的LUMO较低，通过协同作用在负极侧还原形成均匀的SEI膜，进一步稳定电池性能。通过SEM、XPS等系列表征，进一步证实，通过在正极表面形成了薄而均匀的富B和富F的无机电解质界面，减少了二次粒子的开裂从而缩小正极和电解液之间的接触面积，极大地抑制了电接触不良、副反应以及过渡金属离子溶出，从而突破了高镍三元正极在高电压下容量衰减严重等障碍，为设计开发高能量密度锂离子电池提供了新的思路和途径。



高压氟化电解液体系在电极电解液界面的表现、DFT计算以及全电池循环性能

原文地址: <http://www.china-nengyuan.com/tech/180579.html>