

超级电容器关键材料与器件专刊



锂离子电容器预锂化技术:现状、局限与展望

孙淑婷^{1,2,3}, 刘闯¹, 刘瑞^{2,3}, 朱曾丽^{2,3}, 郑俊生¹

(¹同济大学汽车与能源学院, 同济大学新能源汽车工程中心, 上海 201804; ²安徽开阳科技有限公司, 安徽芜湖 241000; ³奇瑞汽车股份有限公司, 安徽 芜湖 241000)

摘要: 锂离子电容器兼具高能量密度与高功率密度优势, 在电网调频、数据中心功率补偿等场景中极具应用潜力。但其负极在循环过程中固态电解质界面的形成和不可逆嵌锂行为, 会造成大量活性锂损耗, 严重影响器件性能。预锂化是解决这一瓶颈的关键技术, 但深度预锂化引发的“不可逆锂”生成与固态电解质界面失效, 使器件高能量密度与长循环寿命难以兼顾。本文系统梳理了预锂化在补偿初始锂损失、构建锂源储备和拓宽电压窗口三方面的核心作用, 分析了深度预锂化条件下“不可逆锂”的生成机理与固态电解质界面“自加速”失效机制, 重点对比了直接接触、电化学、化学及正极预锂化4种技术路径, 指出各类方法在应对“高补锂量-界面稳定性”核心矛盾时的固有局限。评述了当前在参数调控、界面修饰及界面组成优化方面的研究进展, 认为现有策略尚未从热力学与动力学源头解决“不可逆锂”生成这一问题。最后, 提出未来应聚焦“不可逆锂”源头规避、层级结构界面可控制备以及工艺工程化适配三个方向, 以期为高性能锂离子电容器的设计提供参考。

关键词: 锂离子电容器; 预锂化; 能量密度提升; 循环寿命延长; 界面稳定性; 不可逆锂

doi: 10.19799/j.cnki.2095-4239.2026.0238

中图分类号: TM 538

文献标志码: A

文章编号: 2095-4239 (2026) 05-1812-12

Pre-lithiation technology for lithium-ion capacitors: Current status, limitations, and prospects

SUN Shuting^{1,2,3}, LIU Chuang¹, LIU Rui^{2,3}, ZHU Zengli^{2,3}, ZHENG Junsheng¹

(¹School of Automotive and Energy Engineering, New Energy Vehicle Engineering Center, Tongji University, Shanghai 201804, China; ²Anhui Kaiyang Technology Co., Ltd., Wuhu 241000, Anhui, China; ³Chery Automobile Co., Ltd., Wuhu 241000, Anhui, China)

Abstract: Lithium-ion capacitors (LICs) combine high energy density and high power density, demonstrating considerable potential for several applications such as grid frequency regulation and power compensation for data centers. However, the formation of the solid electrolyte interphase (SEI) and irreversible lithium insertion into the anode during cycling lead to substantial consumption of active lithium, considerably reducing the device performance. Prelithiation is considered a key strategy to address this problem; nevertheless, deep prelithiation induces "irreversible lithium" formation and SEI degradation. Thus, it is challenging to simultaneously achieve high energy density and long cycle life. This review systematically analyzes the critical roles of prelithiation in compensating for the initial lithium

收稿日期: 2026-03-25; 修改稿日期: 2026-04-13。

基金项目: 上海市东方英才计划 (QNDS2024007), 同济大学场景验证项目 (kh0170020242359)。

第一作者: 孙淑婷 (1989—), 女, 硕士。主要研究方向为新能源汽车电池管理系统算法与嵌入式开发、新型能源 (超级电容、氢能等) 车端应用。E-mail: sstfync@126.com; 通信作者: 郑俊生, 教授, 博士生导师, 从事超级电容、电化学储能器件研究, E-mail: jszheng@tongji.edu.cn。

引用本文: 孙淑婷, 刘闯, 刘瑞, 等. 锂离子电容器预锂化技术: 现状、局限与展望[J]. 储能科学与技术, 2026, 15(5): 1812-1823.

Citation: SUN Shuting, LIU Chuang, LIU Rui, et al. Pre-lithiation technology for lithium-ion capacitors: Current status, limitations, and prospects [J]. Energy Storage Science and Technology, 2026, 15(5): 1812-1823.

loss, constructing lithium reservoirs, and widening the operating voltage window, and it reveals the generation mechanism of "irreversible lithium" under deep prelithiation conditions as well as the SEI "self-accelerating" failure mechanism. In addition, four representative prelithiation strategies, i. e., direct-contact, electrochemical, chemical, and cathode prelithiation, are comparatively evaluated. The inherent limitations of these strategies in addressing the fundamental trade-off between high lithium compensation and interfacial stability are also discussed. Moreover, Recent advances in parameter regulation, interfacial modification, and interphase composition optimization are summarized. The study indicates that, from thermodynamic and kinetic perspectives, the existing strategies have not yet fundamentally resolved the formation of "irreversible lithium." Finally, future research directions, including "irreversible lithium" mitigation at its origin, controllable fabrication of hierarchical interfacial structures, and enhancement of the compatibility with scalable engineering processes, are proposed to guide the design of high-performance LICs.

Keywords: lithium-ion capacitors; prelithiation; energy density improvement; cycle life extension; interfacial stability; irreversible lithium

随着新型电力系统的深入推进与高可靠数字基础设施的规模化部署，电网频率调节、数据中心瞬时功率补偿等关键应用场景对储能器件提出了“高能量密度、高功率输出与超长循环寿命”的苛刻要求^[1]。然而，当前主流储能技术在满足上述多维性能指标方面仍存在显著短板：锂离子电池虽具备较高的能量密度，但其功率密度低、循环寿命相对有限（通常低于 5000 次），难以适应高频次、大功率冲击性工况下的服役需求^[2]；双电层电容器尽管可实现百万次级的超长循环，但其能量密度偏低（通常 <10 Wh/kg），难以满足系统对持续能量供给的基本需求^[3]。锂离子电容器（lithium-ion capacitor, LIC）由电池型负极与电容型正极组成[图 1(a)]，理论上兼具高功率（>10 kW/kg）、较高能量密度（15~

30 Wh/kg）和长循环寿命（>20 万次）的协同优势，是上述应用场景中极具潜力的储能解决方案^[4]。

预锂化是锂离子电容器实现高能量密度的关键技术，其核心作用在于补偿负极材料在循环过程中因固态电解质界面（solid electrolyte interphase, SEI）形成及不可逆嵌锂而造成的锂损失。为最大化能量密度，负极往往需要进行深度预锂化处理[图 1(b)]，以期获得更低的电位和更高的容量输出^[5]。然而，深度预锂化过程中局部锂化学势的异常升高易诱发副反应加剧^[6]，导致“不可逆锂”的生成与积聚[图 1(c)]。这一现象不仅造成 SEI 的异常增厚，还会破坏电极结构完整性，最终导致器件循环性能下降^[7]，使锂离子电容器在实际应用中面临高能量密度与长寿命难以兼顾的困境。

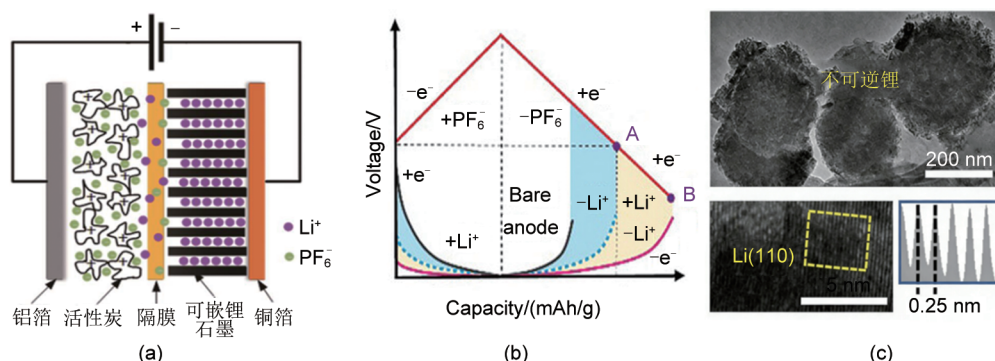


图 1 (a) 锂离子电容器结构^[8]; (b) 预锂化提升器件性能^[5]; (c) 负极“不可逆锂”^[9]

Fig. 1 (a) Structure of lithium-ion capacitors^[8]; (b) Improved device performance by prelithiation^[5]; (c) "Irreversible lithium" on the anode^[9]

针对上述矛盾,本文首先阐明预锂化技术在锂离子电容器中的作用,继而分析深度预锂化条件下“不可逆锂”的生成机理,并分类论述现有预锂化方法及研究进展,最后从源头规避、界面设计与工程适配3个维度提出未来研究方向,以期为高性能锂离子电容器预锂化技术和器件的设计提供参考。

1 预锂化的主要作用

LIC在兼具高能量密度与高功率密度优势的同时,其性能高度依赖体系中锂离子数量及正负极电位匹配。然而,在实际运行中,嵌锂型负极在首次充放电过程中会因SEI的形成及不可逆嵌锂而消耗大量活性锂,导致初始库仑效率低、可循环锂源不足及正负极电荷失衡^[10-11]。同时,受限于锂源匮乏,正极电位窗口难以充分拓展,负极电位也往往处于较高水平,从而限制器件的输出电压与能量密度^[11]。因此,引入预锂化策略,通过预先补充锂源、调控电极电位对于提升器件整体性能具有关键作用^[12-13]。总体而言,预锂化在锂离子电容器中的作用主要体现在3个方面:补偿初始锂损失、构建锂源储备、拓宽电压窗口。

1.1 补偿初始锂损失

LIC负极通常采用碳基、硅基等高比容量材料来提升器件能量密度^[14-16],但其首圈库仑效率普遍较低[图2(a)],根源在于首次充放电过程中的SEI形成和不可逆嵌锂造成的锂损失^[17]。若不进行预锂化处理,这一锂损失将直接导致器件能量密度衰减,且循环稳定性恶化^[18]。如图2(b)所示,未预锂化的AC||HC体系在循环不足30次后即发生容量跳水,且其库仑效率始终低于80%。相比之下,采用电化学预锂化方式对石墨负极进行锂嵌入处理后,器件的比容量和库仑效率均获得显著提升。图中0%、7.5%、30.3%、71.1%及89.0%等比例代表石墨负极嵌锂量占理论嵌锂容量的百分比^[19]。预锂化通过循环前在负极表面构建稳定的SEI,有效减轻初始锂损失,并确保后续循环中的充放电稳定,同时还能预先填补材料中的不可逆嵌锂位点,从而避免活性锂在后续循环中被持续消耗^[20]。相关研究表明,通过化学或电化学预锂化可将负极初始库仑效率提升至接近甚至超过100%^[21],并显著提高全电池初始效率及循环稳定性。

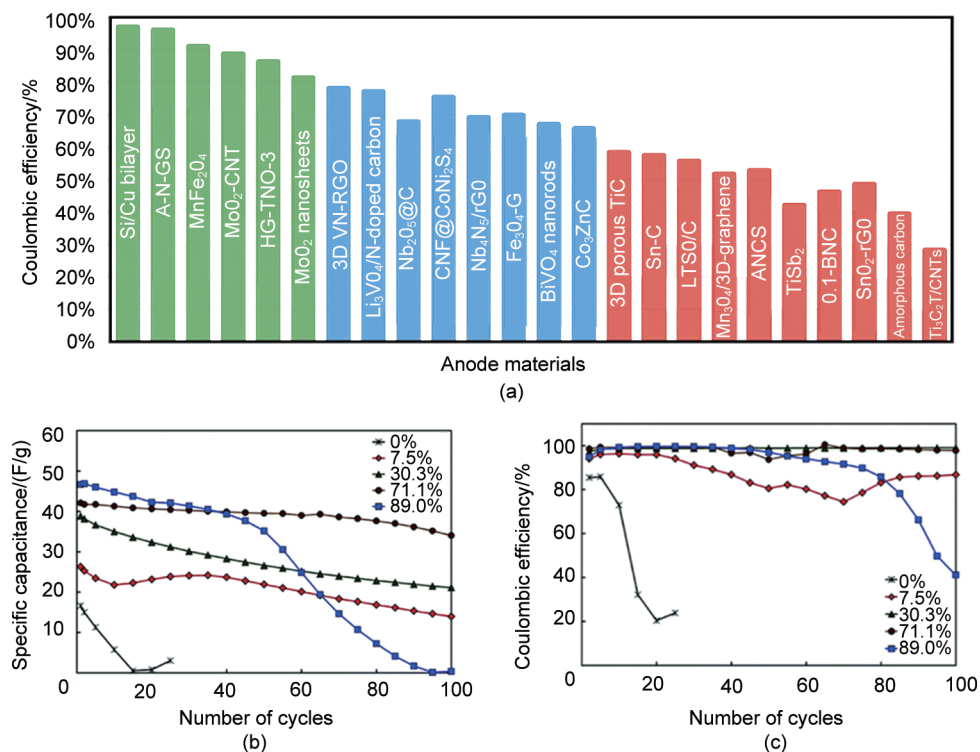


图2 (a) 不同负极材料首圈库仑效率; (b) 预锂化对库仑效率及循环稳定性的提升^[19]

Fig. 2 (a) Initial Coulombic efficiency of different anode materials; (b) Improvement of Coulombic efficiency and cycling stability by prelithiation^[19]

1.2 构建锂源储备

LIC中可参与循环的锂离子来源于电解液中有限的锂盐，循环过程中，副反应及锂离子被界面的不可逆捕获会导致电解液中的锂盐不断消耗，使体系可用锂量逐渐减少^[22]，引发器件容量衰减与循环稳定性下降^[23]。

预锂化向负极引入的额外活性锂，构成了与电解液锂盐并行的第二锂源^[24-25]。这部分活性锂以可逆形式嵌入负极储锂位点，可在后续充放电过程中反复嵌入与脱出，相当于为器件建立了一个“锂源储备池”。当电解液中的锂盐因副反应而损耗时，储存在负极中的活性锂可及时补充至循环体系中，保障长循环过程中的容量保持率与运行稳定性。从材料层面看，这一“锂源储备”效应源于预锂化对负极储锂能力的提升。研究表明，经预锂化处理后的硬碳负极，其可逆嵌锂容量可提升30%以上^[26]，且在高倍率循环中表现出更优的容量保持率。此外，充足的锂源储备还有助于维持电极界面处稳定的离子浓度梯度，减缓因局部Li⁺耗尽引起的极化现象^[27]，从而进一步提升倍率性能与循环寿命。

1.3 拓宽电压窗口

LIC的能量密度与工作电压密切相关，电压窗口的拓宽是提升能量密度的关键途径^[28]。然而，在

未经预锂化的体系中，电极电位受到两方面制约：一方面，正极材料主要依赖阴离子在高电位区的吸附/脱附实现储能，其低电位区几乎无法参与电荷存储，导致容量利用率受限；另一方面，负极处于锂贫乏状态，其电位通常较高[约2.0~3.0 V (vs. Li/Li⁺)]，从而压缩了器件的整体工作电压窗口，影响器件能量密度的提升。

预锂化可有效解决这一困境。在正极侧，预锂化激活了低电位区的储能潜力，原位核磁共振研究显示，在经过预锂化处理的AC||HC体系中，当电压低于开路电压时，Li⁺会在正极表面形成额外的双电层参与储能^[29]，实现“双离子”协同工作机制：阴离子在高电位区吸附，而Li⁺在低电位区参与双电层形成，从而显著提升正极容量贡献率。这一机制使正极有效工作电压从原本的高电位区向低电位区拓展，例如，AC||LMCMB型LIC经过预锂化后正极电压范围可从3.5~4.2 V扩大至2.6~4.2 V甚至2.1~4.2 V（图3），系统容量也随之增加^[30]。此外，预锂化还改善了电解液中离子浓度分布，使低电位区的Li⁺供给更加充足，有助于缓解高倍率放电条件下的离子传输受限问题^[31]，并增强正极在快速充放电过程中的响应能力。

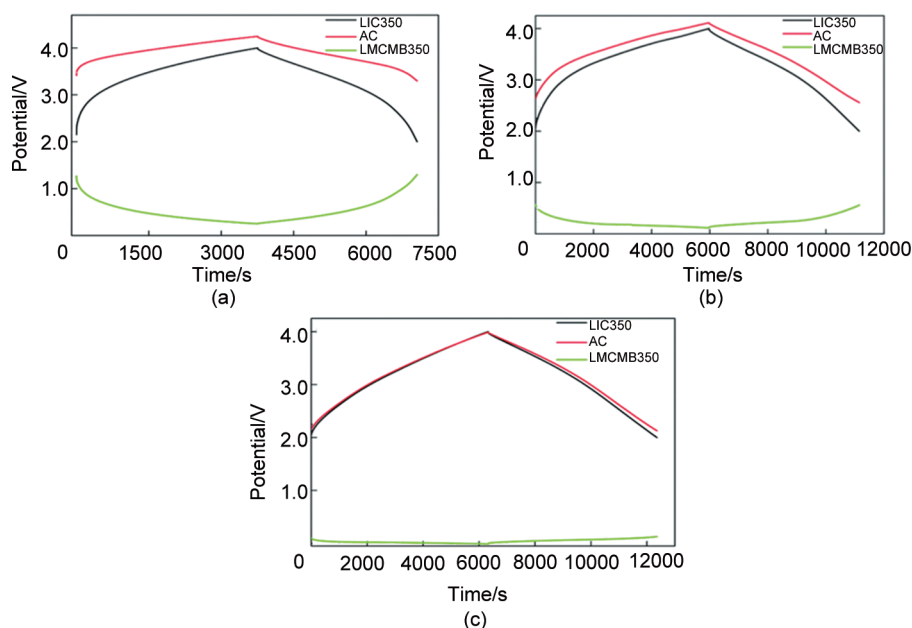


图3 AC||LMCMB型LIC充放电曲线^[30]：(a) 未经预锂化处理；(b) 预锂化程度较低；(c) 预锂化程度较高

Fig. 3 Galvanostatic charge-discharge curves of AC||LMCMB LIC^[30]: (a) Without prelithiation; (b) Low degree of prelithiation; (c) High degree of prelithiation

在负极侧, 预锂化可显著降低其初始电位(图3), 使其由锂贫乏状态转变为接近理想嵌锂状态, 电位可降至0.1~0.7 V (vs. Li/Li⁺)^[32]。负极电位的降低直接提升了器件的输出电压, 本文作者团队研究发现^[33], 通过稳定化金属锂粉(stabilized lithium metal powder, SLMP)对硬碳负极进行预锂化后, AC||HC体系的工作电压窗口可从2.0~3.8 V扩展至2.2~4.0 V, 能量密度提升约40%。Ou等^[34]进一步通过控制预锂化程度, 将负极电位精准调控至0.1 V以下, 实现了高电压输出和优异倍率性能。尽管负极电位降低能够显著提高器件能量密度, 但过低的电位可能带来安全风险。Lin等^[35]研究发现, 当负极电位低于0.1 V时, 锂枝晶析出的风险显著增加, 可能导致电池短路或热失控。

综上所述, 预锂化是提升LIC性能的关键手段, 可有效补偿锂损失、构建锂源储备并拓宽电压窗口, 大幅改善器件能量密度与循环稳定性。但为追求更高性能而开展的深度预锂化, 会诱发“不可逆锂”生成, 还会进一步破坏SEI稳定性, 影响器件性能。

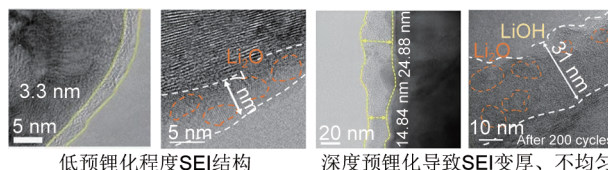
2 深度预锂化的矛盾与代价

在实现锂源补偿的同时, 预锂化过程往往伴随着一类不可忽视的副反应, 即“不可逆锂”的生成。“不可逆锂”泛指在预锂化及后续循环中失去电化学活性的锂物种, 主要以被孤立的金属锂团簇或被固定于负极表面的化学锂化位点形式存在^[36], 其产生原因可从热力学和动力学角度分析。热力学上, 当负极表面锂活性较高时, 部分锂优先与负极表面缺陷位或不规则位点发生不可逆反应, 形成不可导电的化学锂化产物。动力学上, 高补锂速率下负极表面局部Li⁺浓度过高, 导致金属锂以团簇形式沉积在负极孔隙或表面, 部分锂在后续循环中无法参与电子传导^[37], 从而形成“不可逆锂”。

为实现更高能量密度, 往往需要对负极进行深度预锂化处理, 即引入较高补锂量^[38]。然而, 随着补锂程度的提升, 界面副反应显著增强, “不可逆锂”的生成呈现出加剧趋势, 从而在“高补锂量”与“SEI稳定性”之间形成内在制约关系。研究表明, 当预锂化程度较低时, 反应驱动力较为温和, 负极表面有利于形成较为均匀的SEI(厚度通常<7 nm)^[39]; 深度预锂化时负极锂化学势显著升高, 导致SEI厚

度分布不均(波动可达10~30 nm), 强烈驱动“不可逆锂”的生成与积累^[40]。更关键的是, “不可逆锂”的存在会触发SEI的“自加速”失效机制: 循环过程中, SEI可从初始的约7 nm非均匀增厚至30 nm以上(图4), 内部应力不断累积, 诱发SEI结构破裂; 同时, 新暴露的活性界面会持续与电解液发生副反应, 导致SEI进一步异常增厚, 最终引发界面结构破坏与阻抗急剧上升。

不仅如此, “不可逆锂”的存在还会引发更为严重的后果。一方面, 被孤立的“死锂”会堵塞电极内部的离子传输通道, 加剧局部极化, 导致容量与倍率性能持续下降^[41]。另一方面, “死锂”在负极表面的不均匀堆积会破坏原有电场分布, 引发后续循环中锂枝晶的优先形核与生长, 所伴生的体积膨胀与机械应力可导致电极结构粉化甚至隔膜刺穿, 带来严重的安全隐患^[42-43]。



低预锂化程度SEI结构 深度预锂化导致SEI变厚、不均匀

图4 预锂化程度对SEI结构影响^[34, 39]

Fig. 4 Effect of prelithiation degree on SEI structure^[34, 39]

综上所述, 深度预锂化虽为提升LIC能量密度的必要手段, 却会引发“不可逆锂”的大量生成, 其不仅造成活性锂损耗, 更会导致SEI厚度不均, 并触发SEI自加速失效机制, 最终产生“高补锂量-SEI稳定性”矛盾, 这也成为各类预锂化技术研发中亟需破解的关键问题。

3 主要的预锂化方式与局限

目前预锂化方式主要包括直接接触预锂化、电化学预锂化、化学预锂化以及正极预锂化等^[44]。这些方式各有优势, 但在应对“高补锂量-SEI稳定性”这一核心矛盾时, 均存在各自的局限。

3.1 直接接触预锂化

直接接触预锂化基于物理接触-电化学离子嵌入机制(图5), 通过锂源与负极的直接离子传导实现精准补锂, 具有工艺兼容性好、成本效益高、易于规模化等优势^[45-46], 是目前预锂化研究的焦点。其锂源形式主要有SLMP、厚锂带、薄锂箔、带孔

薄锂箔等^[47]。2012年，Cao等^[48]率先将SLMP用于AC||HC型LIC预锂化，器件比能量达25 Wh/kg，随后还基于此方法构建了循环寿命达20万次的电容器^[49]。虽然直接接触预锂化可大幅提升器件性能，但预锂化过程的均匀性却难以控制，高补锂程度下锂源与电极接触界面易存在局部不均，容

易诱发“不可逆锂”的积聚与SEI厚度不均^[46, 50]。此外，现有研究多关注直接接触预锂化参数与宏观性能的经验关联^[51]，但对于预锂化过程中的界面反应机制—包括热力学驱动力（锂化学势）和动力学过程（SEI成核与生长速率）仍缺乏系统深入的研究。

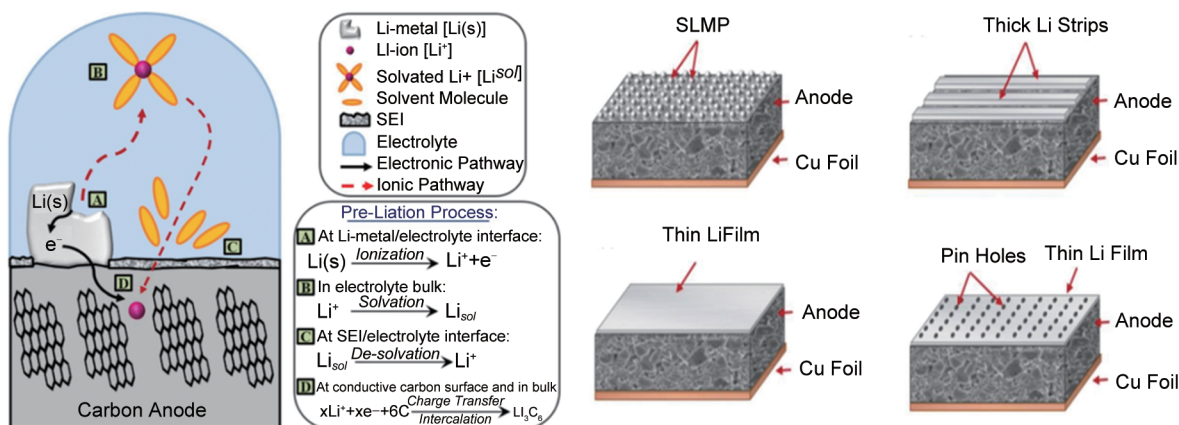


图5 直接接触预锂化过程及四种不同锂源^[52]

Fig. 5 Direct contact prelithiation process and four different lithium sources^[52]

3.2 电化学预锂化

电化学预锂化通过将负极与锂金属组装成半电池后外接短路，利用电势差驱动Li⁺嵌入负极（图6）。相较于直接接触法，电化学预锂化可通过电流或电压调节预锂化速率，精准把控预锂化程度，一定程度上改善了SEI均匀性^[53]。Seiji Kumagai等^[54]将石墨硬碳复合负极通过三次重复预锂化，将负极预锂化水平精准把控至负极嵌锂容量的80%，器件功率密度在2.17 kW/kg下能量密度达48.5 Wh/kg，10000次循环后能量密度保持率达80.5%。但该方法也存在明显局限：预锂化过程需要构建含金属锂电极的临时电池结构，涉及多次拆装工序，不仅大幅增加了工艺复杂性与生产成本^[55]，还有可能造成电极损坏；在LIC所需的高补锂量场景下，往往需要数十小时至数周的化成时间，严重制约生产效率。若为提升效率而提高负极锂化学势，又将加剧“不可逆锂”的生成与累积，导致器件寿命下降^[56]。Tseng等^[55]提出一种新型三阶段电化学预锂化方法，先以高电流密度（100 mA/g）将电极电位降至0.1 V，再以低电流密度（20 mA/g）降至0.01 V，最后在0.01 V下恒压2 h确保SEI完全形成，预锂化时间从1913 min降至1080 min，但时间仍旧较长。

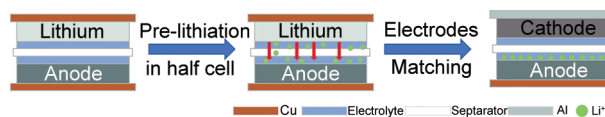


图6 电化学预锂化

Fig. 6 Electrochemical prelithiation

3.3 化学预锂化

化学预锂化利用含锂有机溶液与负极材料之间的化学势差^[57]，自发驱动Li⁺嵌入负极（图7）。该方法仅需将电极浸入溶液即可完成预锂化，操作简单，与规模化生产工艺兼容性较好。南京大学何平教授团队^[58]开发了一种基于锂-4,4'-二甲基联苯/2-甲基四氢呋喃（Li-DMBP/2-MeTHF）的化学预锂化试剂，仅用15 min便完成了Si/C负极的预锂化，且器件可稳定循环超过400次，容量保持率高达78.2%。同时，由于不涉及金属锂的直接操作，工艺安全性得到显著提升。然而，对于LIC常用的硬碳负极，其嵌锂电位较高，当溶液中锂化合物的还原能力不足时，Li⁺难以有效嵌入，负极电位仅能降至0.2 V (vs. Li⁺/Li)，无法满足高补锂量需求^[59]。针对此问题，Decaux等^[60]以双氟磺酰亚胺锂（LiTFSI）为溶质，制备2 mol/L高浓度LiTFSI（EC : DMC）溶液，预锂化后负极电位降至0.105 V (vs. Li⁺/Li)，但采用

还原能力更强的试剂以提升补锂量，会因锂化学势过高而诱发“不可逆锂”的生成与累积^[61]，陷入“高补锂量”与“SEI稳定性”难以兼顾的困境。

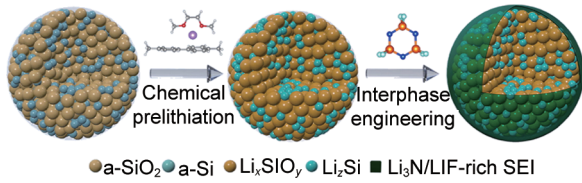


图7 化学预锂化^[62]

Fig. 7 Chemical prelithiation^[62]

3.4 正极预锂化

正极预锂化通过在正极引入富锂材料（如Li₂O、Li₂S、Li₃N等）或锂盐添加剂^[63-64]，利用其在首次充电过程中分解释放Li⁺，间接实现对LIC负极

的补锂（图8）。其优势在于无需对负极进行额外处理，且避免了金属锂的直接使用，安全性较高^[65]。添加少量富锂材料即可有效提升器件性能，例如，华中科技大学孙永明教授^[66]发现，添加4.8%（质量分数）的Li₂O复合材料可使负极初始比容量提升16%。然而，该方法在LIC体系中面临根本性挑战：富锂添加剂的分解往往伴随气体释放，可能导致器件鼓胀，尤其是在高补锂量需求下副作用更为显著；分解残留物可能堵塞正极孔道或形成惰性界面层，影响离子传输与长期循环稳定性^[67-68]。更重要的是，正极预锂化的补锂能力有限：大连理工大学李文翠教授^[69]发现，正极补锂剂的主要功能在于补充电解液中消耗的锂离子，仅能间接辅助SEI形成，难以直接满足LIC对高补锂量的需求。

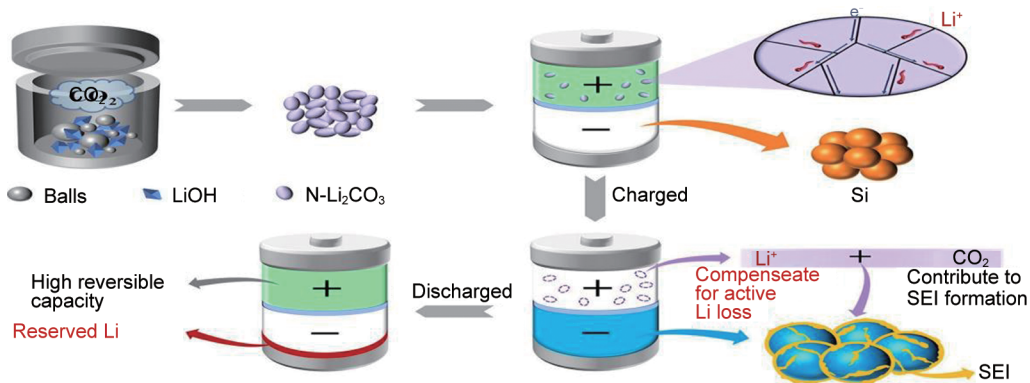


图8 正极预锂化^[70]

Fig. 8 Cathode prelithiation^[70]

综上所述，直接接触、电化学、化学及正极预锂化4种主流技术各有优势与应用特点，却均未能有效破解预锂化过程中“高补锂量-SEI稳定性”的核心矛盾，或存在预锂化均匀性差、工艺复杂低效、补锂能力不足等问题，最终均易诱发“不可逆锂”生成、破坏界面稳定性，难以兼顾器件高能量密度与长循环寿命的性能需求。

4 现有优化策略及其困境

针对深度预锂化过程中“高补锂量-SEI稳定性”这一核心矛盾，当前研究主要从工艺优化、界面修饰和组分调控3个层面寻求突破：一是通过调控预锂化参数缓解锂化学势过高引发的副反应；二是对引入塑性组分对SEI进行修饰，以增强其结构韧性；三是通过优化SEI组成来提升界面稳定性。

4.1 预锂化参数调控

预锂化关键参数直接影响SEI的初始结构与稳定性。研究表明，直接接触预锂化温度过高易导致负极“不可逆锂”生成加速和SEI分布不均^[71]，电化学预锂化化成时间过长会引发性能衰减^[72]；化学预锂化通过电解液及添加剂调控Li⁺的溶剂化结构，可有效提升预锂化效率并优化SEI结构^[73]。Lu等^[50, 74-75]深入研究了直接接触预锂化过程中温度、环境气氛、电解液添加剂等参数对负极“不可逆锂”的生成和SEI形貌的影响规律，表明优化预锂化工艺参数可有效调控SEI组分与结构、抑制“不可逆锂”过度积累。但目前这些研究多关注参数与宏观性能的关系，对于预锂化参数如何影响界面反应的热力学与动力学过程仍缺乏系统阐释^[51, 59]，导致难以建立参数与“不可逆锂”生成的定量关联。

4.2 预锂化与SEI修饰技术结合

通过在预锂化过程或后续处理中引入塑性组分，能够有效增强SEI的韧性，进而抑制负极循环应力累积和锂枝晶生长，最终延长器件使用寿命^[76-77]。例如，清华大学贺艳兵等提出的“富塑性无机组分SEI”设计^[78]，以及华中科技大学黄云辉等^[79]构筑的含聚偏氟乙烯-六氟丙烯的塑性复合界面层，均是这一方向的代表性进展。然而，在高能量密度需求下，此类方法未能从根本上改变负极界面锂化学势过高的热力学约束^[80]，仍难以完全避免“不可逆锂”的生成及其引发的SEI结构持续劣化。

4.3 SEI组分优化

SEI的化学组成和微观结构不仅影响界面稳定性，更直接决定了预锂化过程中活性锂的消耗。研究表明，当SEI中富含LiF等高模量无机组分时，其致密的结构能够有效阻隔电解液与负极表面的直接接触，从而抑制电解液分解反应^[81]； Li_2CO_3 具有较低的 Li^+ 扩散能垒，适当提升比例可有效提升SEI的离子电导率^[82-83]，促进 Li^+ 快速均匀传输，从而缓解局部锂通量集中，抑制“不可逆锂”的持续生成。Qin等^[84]采用“梯度化成电位”调控技术，实现了对SEI中LiF/ Li_2CO_3 比例的精确控制，有效减少了副反应对活性锂的消耗。同时，不少研究者通过原子层沉积技术构建人工SEI层^[85]，以完全规避原生SEI形成过程中的“不可逆锂”产生。

综上所述，尽管围绕预锂化“高补锂量-SEI稳定性”这一矛盾的研究已取得积极进展，但上述策略仍面临根本性局限：它们都是在“不可逆锂”已开始形成之后进行的被动补救，而非从热力学与动力学源头干预锂化学势过高所驱动的副反应路径。

5 总结与展望

综上所述，预锂化作为提升LIC能量密度与循环稳定性的关键技术，其本质并非简单的锂源补偿，而是对负极界面化学势分布与界面反应路径的系统性调控。现有直接接触、电化学及化学预锂化方法虽在补锂能力上取得显著进展，但均不可避免地在高补锂量条件下面临局部锂化学势过高的问题，从而诱导“不可逆锂”的生成；正极预锂化补锂能力有限且分解后残留材料会降低器件的能量密度。尽管围绕预锂化参数调控、界面修饰及SEI结

构优化的研究已在一定程度上改善了界面稳定性，但这些策略尚未从热力学驱动力与动力学过程协同调控的角度根本解决“高补锂量”与“SEI稳定性”之间的内在矛盾。因此，如何在保证充足锂供给的同时抑制不可逆反应，并构建稳定且高效的界面结构，仍是预锂化技术进一步发展的关键问题。针对上述根本矛盾，未来研究亟需从以下方向深入探索：

(1) “不可逆锂”生成的源头规避策略

未来研究应聚焦于揭示“不可逆锂”生成的热力学阈值与动力学判据，从源头上规避其形成，打破“高补锂量必然导致高界面驱动力”的传统认知。“不可逆锂”的本质源于局部区域锂离子浓度与电子供给的瞬时失衡，使界面反应偏离嵌锂主路径转向副反应。因此，可通过构建离子传输调控层、优化溶剂化结构或引入弱配位电解液，降低界面过电位与 Li^+ 去溶剂化能垒，使嵌锂过程以“准平衡推进”方式优先生长，而非副反应占优。结合原位表征技术精确量化“不可逆锂”的演化过程，将为上述源头调控策略提供理论依据，最终实现高补锂量与SEI稳定性的协同突破。

(2) 高稳定、高离子扩散SEI的设计原则

未来应从“结构设计”而非单纯“组分调控”出发，构建具有明确层级结构的SEI体系。组分上明确LiF、 Li_2CO_3 和有机相等协同作用机制；结构上实现SEI的有序化与功能分区：构建内层无机相支撑、外层低扩散能垒组分的层级结构，在纳米尺度协同优化离子传输与力学稳定性，从而建立“组分-结构-性能”定量关联，将界面构筑由经验调控提升至可预测设计。

(3) 低成本、高效预锂化工艺的工程适配

在推进预锂化技术基础研究的同时，其工程化可扩展性同样值得关注。除规避“不可逆锂”生成外，降低工艺成本与提升制备可控性亦是实现规模化应用的关键。从当前技术路线来看，电化学预锂化虽控制精准但流程复杂，直接接触预锂化虽操作简便却面临均匀性与安全性挑战。因此，未来研究应致力于开发与现有电极制备流程高度兼容的预锂化策略，简化工艺路径、提升过程可控性。从工程视角而言，只有在确保界面稳定性的前提下实现工艺流程的简化和成本的降低，预锂化技术才能真正突破实验室局限，支撑锂离子电容器的大规模产业化应用。

参考文献

- [1] 国家发展改革委, 国家能源局. 新型储能规模化建设专项行动方案(2025—2027年). 发改能源(2025)1144号, 2025[R].
National Development and Reform Commission, National Energy Administration. Special action plan for large-scale construction of new energy storage (2025—2027). Fa Gai Neng Yuan [2025] No. 1144, 2025[R].
- [2] LIU H, ZHAO L Y, YE Y S, et al. Extremely fast-charging batteries: Principle, strategies, detection, and prediction[J]. Chemical Reviews, 2025, 125(20): 9553-9678. DOI:10.1021/acs.chemrev.5c00203.
- [3] PARVIN N, MERUM D, KANG M, et al. Recent advances in hybrid supercapacitors: A review of high performance materials and scalable fabrication techniques[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2025, 13(30): 24320-24386.
- [4] LI S N, XU Y N, ZHANG X D, et al. Anode materials for lithium-ion capacitors: From fundamental mechanisms to design strategies[J]. Energy Storage Materials, 2025, 80: 104404. DOI:10.1016/j.ensm.2025.104404.
- [5] JEON S, LM S, KANG I, et al. Solution-based deep prelithiation for lithium-ion capacitors with high energy density[J]. Small, 2024, 20(30): 2401295. DOI:10.1002/sml.202401295.
- [6] LIN Z W, TONG Z, CAI H W, et al. Prelithiation technology for high energy density lithium-ion batteries: Design, progress, advantages and challenges[J]. Energy Storage Materials, 2025, 83: 104709. DOI:10.1016/j.ensm.2025.104709.
- [7] OGLE Y M J W, JOHNSTON B I J, HALL D S, et al. Understanding degradation in single-crystalline Ni-rich Li-ion battery cathodes[J]. Chemical Reviews, 2025, 125(20): 9774-9806.
- [8] 张晓虎, 孙现众, 张熊, 等. 锂离子电容器在新能源领域应用展望[J]. 电工电能新技术, 2020, 39(11): 48-58. DOI: 10.12067/AEEEE2001022.
ZHANG X H, SUN X Z, ZHANG X, et al. Prospect of lithium-ion capacitor application in new energy field[J]. Advanced Technology of Electrical Engineering and Energy, 2020, 39(11): 48-58. DOI: 10.12067/AEEEE2001022.
- [9] YUE X Y, YAO Y X, ZHANG J, et al. The raw mixed conducting interphase affords effective prelithiation in working batteries[J]. Angewandte Chemie International Edition, 2022, 61(29): e202205697. DOI:10.1002/anie.202205697.
- [10] ZHANG S Q, ANDREAS N S, LI R H, et al. Mitigating irreversible capacity loss for higher-energy lithium batteries[J]. Energy Storage Materials, 2022, 48: 44-73. DOI:10.1016/j.ensm.2022.03.004.
- [11] SIVAKKUMAR S R, PANDOLFO A G. Evaluation of lithium-ion capacitors assembled with pre-lithiated graphite anode and activated carbon cathode[J]. Electrochimica Acta, 2012, 65: 280-287. DOI:10.1016/j.electacta.2012.01.076.
- [12] JIN L M, YUAN J M, SHELLIKERI A, et al. An overview on design parameters of practical lithium-ion capacitors[J]. Batteries & Supercaps, 2021, 4(5): 749-757. DOI:10.1002/batt.202000296.
- [13] JIN L M, ZHENG J S, ZHENG J P. Theoretically quantifying the effect of pre-lithiation on energy density of Li-ion batteries[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2021, 168(1): 010532. DOI:10.1149/1945-7111/abdb47.
- [14] LOKHANDE A C, KANAGARAJ A B, MANAGUTTI P B, et al. Experimental and theoretical investigation of silicon-based carbon composite electrode for high performance Li-ion capacitors[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2024, 1003: 175665. DOI:10.1016/j.jallcom.2024.175665.
- [15] LV X R, ZHENG J S, LU Y Y, et al. CoMn₂O₄/CoMn₂S₄ heterostructure as a superior-performance anode for lithium-ion capacitors[J]. Journal of Energy Storage, 2026, 145: 119714. DOI:10.1016/j.est.2025.119714.
- [16] ZHENG J S, XING G G, ZHANG L Y, et al. A minireview on high-performance anodes for lithium-ion capacitors[J]. Batteries & Supercaps, 2021, 4(6): 897-908. DOI:10.1002/batt.202000292.
- [17] ZHENG J S, LANG X H, LV X R, et al. The synergistic effect of sodium carboxymethyl cellulose and polytetrafluoroethylene for highly stable graphite anodes[J]. Journal of Energy Storage, 2026, 149: 120249. DOI:10.1016/j.est.2025.120249.
- [18] QIN N, JIN L M, XING G G, et al. Decoupling accurate electrochemical behaviors for high-capacity electrodes via reviving three-electrode vehicles[J]. Advanced Energy Materials, 2023, 13(11): 2204077. DOI:10.1002/aenm.202204077.
- [19] KUMAGAI S, ISHIKAWA T, SAWA N. Cycle performance of lithium-ion capacitors using graphite negative electrodes at different pre-lithiation levels[J]. Journal of Energy Storage, 2015, 2: 1-7. DOI:10.1016/j.est.2015.05.005.
- [20] SIMON P, GOGOTSI Y. Perspectives for electrochemical capacitors and related devices[J]. Nature Materials, 2020, 19(11): 1151-1163. DOI:10.1038/s41563-020-0747-z.
- [21] DONG H C, YANG T Z, LIU C W, et al. Controllable and scalable prelithiation of dry silicon-based anodes for high-energy-density lithium-ion batteries[J]. Energy Storage Materials, 2025, 75: 104072. DOI:10.1016/j.ensm.2025.104072.
- [22] MADABATTULA G, WU B, MARINESCU M, et al. Degradation diagnostics for Li₄Ti₅O₁₂-based lithium ion capacitors: Insights from a physics-based model[J]. Journal of the Electrochemical Society, 2020, 167(4): 043503. DOI:10.1149/1945-7111/ab7655.
- [23] JAGADALE A, ZHOU X, XIONG R, et al. Lithium ion capacitors (LICs): Development of the materials[J]. Energy Storage Materials, 2019, 19: 314-329. DOI:10.1016/j.ensm.2019.02.031.
- [24] LAI K L, GAO L Y, CHANG J K, et al. Advancing Li-ion capacitors through dual wet chemical prelithiation[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 2024, 663: 685-696. DOI:10.1016/j.jcis.2024.02.199.
- [25] BANSAL N, HUSSAIN A, KUMAR N, et al. Nanoarchitected *in situ* pre-lithiated carbon anodes for high-power and long-life Li-ion capacitors[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2025, 13(41): 35292-35307.
- [26] ZHANG X X, QU H N, JI W X, et al. Fast and controllable prelithiation of hard carbon anodes for lithium-ion batteries[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2020, 12(10): 11589-11599.

- [27] KANG J, KOO B, KANG S, et al. Physicochemical nature of polarization components limiting the fast operation of Li-ion batteries[J]. *Chemical Physics Reviews*, 2021, 2(4): 041307. DOI: 10.1063/5.0068493.
- [28] CAO W J, ZHENG J P. The effect of cathode and anode potentials on the cycling performance of Li-ion capacitors[J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2013, 160(9): A1572-A1576. DOI:10.1149/2.114309jes.
- [29] SHELLIKERI A, HUNG I, GAN Z H, et al. *In situ* NMR tracks real-time Li ion movement in hybrid supercapacitor-battery device[J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2016, 120(12): 6314-6323.
- [30] ZHANG J, SHI Z Q, WANG C Y. Effect of pre-lithiation degrees of mesocarbon microbeads anode on the electrochemical performance of lithium-ion capacitors[J]. *Electrochimica Acta*, 2014, 125: 22-28. DOI:10.1016/j.electacta.2014.01.040.
- [31] LI Y Y, LIU Y P, XUE L X, et al. Eliminating anion depletion region and promoting Li⁺ solvation via anionphilic metal organic framework for dendrite-free lithium deposition[J]. *Nano Energy*, 2022, 92: 106708. DOI:10.1016/j.nanoen.2021.106708.
- [32] KANG M J, JEONG S, HWANG G, et al. Study on direct-contact prelithiation of soft carbon anodes using lithium foil for lithium-ion capacitors[J]. *Energies*, 2025, 18(9): DOI:10.3390/en18092276.
- [33] CAO W J, SHIH J, ZHENG J P, et al. Development and characterization of Li-ion capacitor pouch cells[J]. *Journal of Power Sources*, 2014, 257: 388-393. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2014.01.087.
- [34] OU Y T, ZHANG B, ZHAN R M, et al. A salt-free medium facilitating electrode prelithiation towards fast-charging and high-energy lithium-ion batteries[J]. *Nature Communications*, 2025, 16: 7956. DOI:10.1038/s41467-025-63257-w.
- [35] LIN X K, KHOSRAVINIA K, HU X S, et al. Lithium plating mechanism, detection, and mitigation in lithium-ion batteries[J]. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2021, 87: 100953. DOI:10.1016/j.pecc.2021.100953.
- [36] MOHAMMADI A, GHORBANZADE P, LÓPEZ DEL AMO J M, et al. From formation to reactivation of inactive lithium in lithium metal anodes[J]. *ChemElectroChem*, 2025, 12(20): e202500242. DOI: 10.1002/celec.202500242.
- [37] LI Y C, ZHENG X Y, CAO Z, et al. Unveiling the mechanisms into Li-trapping induced (ir)reversible capacity loss for silicon anode [J]. *Energy Storage Materials*, 2023, 55: 660-668. DOI:10.1016/j.ensm.2022.12.032.
- [38] LV X R, ZHENG J S, LANG X H, et al. Electric double layer adsorption as a dual-function "medicine" for *in-situ* solid electrolyte interphase reconstruction and lithium supply on silicon-carbon anodes[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2026, 528: 172006. DOI:10.1016/j.cej.2025.172006.
- [39] LEE J, JIN D, KIM J Y, et al. Dry pre-lithiation for graphite-silicon diffusion-dependent electrode for all-solid-state battery[J]. *Advanced Energy Materials*, 2023, 13(25): 2300172. DOI: 10.1002/aenm.202300172.
- [40] JIN L M, GUO X, SHEN C, et al. A universal matching approach for high power-density and high cycling-stability lithium ion capacitor[J]. *Journal of Power Sources*, 2019, 441: 227211. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2019.227211.
- [41] ABDOLLAHIFAR M, PAOLELLA A. "Dead lithium" formation and mitigation strategies in anode-free Li-metal batteries[J]. *Batteries & Supercaps*, 2025, 8(3): e202400505. DOI:10.1002/batt.202400505.
- [42] JIN C B, SHENG O W, WEI G Y, et al. Inhibiting and rejuvenating dead lithium in battery materials[J]. *Nature Reviews Chemistry*, 2025, 9(8): 553-568. DOI:10.1038/s41570-025-00722-6.
- [43] DENG W, QIU B, CHEN J H, et al. Understanding the degradation complexity of ultrahigh-energy lithium metal batteries [J]. *Nature Reviews Chemistry*, 2026: 1-17. DOI:10.1038/s41570-026-00801-2.
- [44] ZHANG Y M, SHEN H Y, LI Y Y, et al. Prelithiation strategies for enhancing the performance of lithium-ion batteries[J]. *RSC Advances*, 2025, 15(2): 1249-1274.
- [45] WANG C, YANG F Z, WAN W, et al. A large-area lithium metal-carbon nanotube film for precise contact prelithiation in lithium-ion batteries[J]. *Energy & Environmental Science*, 2023, 16(10): 4660-4669.
- [46] LU Y Y, ZHENG J S, LV X R, et al. Direct contact pre-lithiation for practical lithium ion batteries: Focus review[J]. *Journal of Energy Chemistry*, 2025, 102: 820-833. DOI:10.1016/j.jechem.2024.11.026.
- [47] JANG E, RYU S, KIM M, et al. Silicon-stabilized lithium metal powder (SLMP) composite anodes for fast charging by *in-situ* prelithiation[J]. *Journal of Power Sources*, 2023, 580: 233326. DOI:10.1016/j.jpowsour.2023.233326.
- [48] CAO W J, ZHENG J P. Li-ion capacitors with carbon cathode and hard carbon/stabilized lithium metal powder anode electrodes[J]. *Journal of Power Sources*, 2012, 213: 180-185. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2012.04.033.
- [49] SHELLIKERI A, YTURRIAGA S, ZHENG J S, et al. Hybrid lithium-ion capacitor with LiFePO₄/AC composite cathode—Long term cycle life study, rate effect and charge sharing analysis[J]. *Journal of Power Sources*, 2018, 392: 285-295. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2018.05.002.
- [50] LU Y Y, LV X R, ZHENG J S, et al. Revealing the dynamic interface evolutions of electrochemical pre-lithiated graphite electrodes in practical workplace atmospheres[J]. *Journal of Power Sources*, 2024, 614: 235024. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2024.235024.
- [51] PEREZ-BELTRAN S, KUAI D C, BALBUENA P B. SEI formation and lithium-ion electrodeposition dynamics in lithium metal batteries via first-principles kinetic Monte Carlo modeling[J]. *ACS Energy Letters*, 2024, 9(11): 5268-5278.
- [52] SHELLIKERI A, WATSON V, ADAMS D, et al. Investigation of pre-lithiation in graphite and hard-carbon anodes using different lithium source structures[J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2017, 164(14): A3914-A3924. DOI:10.1149/2.1511714jes.
- [53] ZHAO S S, SUN X Z, WANG N F, et al. Recent advances in hybrid lithium-ion capacitors: Materials and processes[J]. *ACS Applied Energy Materials*, 2024, 7(24): 11553-11570.

- [54] CHNG C J, MA X Y, ABE Y, et al. Hard carbon/graphite composite anode for durable lithium-ion capacitor[J]. *Journal of Energy Storage*, 2024, 92: 112193. DOI:10.1016/j.est.2024.112193.
- [55] TSENG L C, TAI C W, JAO W Y, et al. A novel efficient three-stage electrochemical pre-lithiation method for the amorphous carbon negative electrodes of lithium-ion capacitors[J]. *Electrochimica Acta*, 2024, 497: 144576. DOI:10.1016/j.electacta.2024.144576.
- [56] JIN L M, SHEN C, WU Q, et al. Pre-lithiation strategies for next-generation practical lithium-ion batteries[J]. *Advanced Science*, 2021, 8(12): 2005031. DOI:10.1002/adv.202005031.
- [57] SATO Y, ROJAS O G, MAKINO S, et al. Li-metal free "in aqua" lithiation and re-lithiation of protected graphite anode for 4 V class aqueous lithium-ion capacitor[J]. *Journal of Power Sources*, 2024, 609: 234684. DOI:10.1016/j.jpowsour.2024.234684.
- [58] HE X W, MU X W, WANG Y G, et al. Fast and scalable complete chemical prelithiation strategy for Si/C anodes enabling high-performance $\text{Li}_x\text{Si} - \text{S}$ full cells[J]. *ACS Applied Energy Materials*, 2023, 6(12): 6790-6796.
- [59] TAN R, LIU K X, ZHU X L, et al. Rational molecular design of aryl-lithium reagent enables precise chemical prelithiation of graphite anodes for achieving ideal 100% initial coulombic efficiency[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2025, 147(25): 21865-21876.
- [60] DECAUX C, LOTA G, RAYMUNDO-PIÑERO E, et al. Electrochemical performance of a hybrid lithium-ion capacitor with a graphite anode preloaded from lithium bis(trifluoromethane) sulfonimide-based electrolyte[J]. *Electrochimica Acta*, 2012, 86: 282-286. DOI:10.1016/j.electacta.2012.05.111.
- [61] LI M X, YUAN J S, JIN M J, et al. Elucidating the chemical pre-lithiation mechanism of hard carbon anodes for ultra-high stability lithium-ion batteries[J]. *Small*, 2025, 21(2): 2407919. DOI: 10.1002/sml.202407919.
- [62] MAN Q Y, SHEN H T, WEI C L, et al. Rational design of F, N-rich artificial interphase via chemical prelithiation initiation strategy enabling high coulombic efficiency and stable micro-sized SiO anodes[J]. *Journal of Energy Chemistry*, 2024, 92: 224-232. DOI: 10.1016/j.jechem.2024.01.046.
- [63] SUN C K, ZHANG X, LI C, et al. High-efficiency sacrificial prelithiation of lithium-ion capacitors with superior energy-storage performance[J]. *Energy Storage Materials*, 2020, 24: 160-166. DOI:10.1016/j.ensm.2019.08.023.
- [64] PARK M S, LIM Y G, HWANG S M, et al. Scalable integration of Li_5FeO_4 towards robust, high-performance lithium-ion hybrid capacitors[J]. *ChemSusChem*, 2014, 7(11): 3138-3144. DOI: 10.1002/cssc.201402397.
- [65] SU K, WANG Y, YANG B, et al. A review: Pre-lithiation strategies based on cathode sacrificial lithium salts for lithium-ion capacitors [J]. *Energy & Environmental Materials*, 2023, 6(6): e12506. DOI: 10.1002/eem2.12506.
- [66] DU J M, WANG W Y, SHENG ENG A Y, et al. Metal/LiF/ Li_2O nanocomposite for battery cathode prelithiation: Trade-off between capacity and stability[J]. *Nano Letters*, 2020, 20(1): 546-552.
- [67] TAO F J, YAO Z Y, HOU J H, et al. Molecularly engineered Li compensation agent-integrated separator enabling regeneration of degraded LiFePO_4 [J]. *Journal of Materials Chemistry A*, 2026, 14(20): 12314-12324.
- [68] ZHU Y L, XU R Y, ZHENG Y C, et al. Unravelling the oxygen evolution mechanism of lithium-rich antiferroelectric prelithiation agent based on anionic oxidation[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2025, 64(19): e202502126. DOI:10.1002/anie.202502126.
- [69] JIA C, SHEN Y F, WANG M, et al. A high-efficiency pre-lithiation strategy for Li-ion capacitor achieved by the synergistic effect of pre-lithiation and solid electrolyte interface film modification[J]. *Journal of Energy Storage*, 2024, 99: 113420. DOI: 10.1016/j.est.2024.113420.
- [70] ZHENG L Y, LI G, ZHANG J J. Grain boundaries boost the prelithiation capability of the Li_2CO_3 cathode additives for high-energy-density lithium-ion batteries[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2023, 475: 146285. DOI:10.1016/j.cej.2023.146285.
- [71] WANG Z Y, HAO W, DUAN T, et al. Temperature-potential coupled regulation of LiPF_6 decomposition to construct LiF grain boundary-rich interphase on graphite anode for fast-charging Li-ion batteries[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2026, 65(10): e25822. DOI:10.1002/anie.202525822.
- [72] SHEN C X, FU R S, XIA Y G, et al. New perspective to understand the effect of electrochemical prelithiation behaviors on silicon monoxide[J]. *RSC Advances*, 2018, 8(26): 14473-14478.
- [73] DONG Y T, CHEN Y M, YUE X Y, et al. Unveiling the adsorption tendency of film-forming additives to enable fast-charging hard carbon anodes with regulated Li plating[J]. *Energy & Environmental Science*, 2024, 17(7): 2500-2511.
- [74] LU Y Y, ZHENG J S, LV X R, et al. Temperature-regulated prelithiated graphite anode for an improved lithium-ion capacitor [J]. *ACS Applied Energy Materials*, 2024, 7(24): 11581-11589.
- [75] LU Y Y, LV X R, SHAO J C, et al. Temperature tailored robust solid electrolyte interface for improved high-area-capacity prelithiated silicon-carbon anode[J]. *Journal of Energy Chemistry*, 2025, 109: 76-88. DOI:10.1016/j.jechem.2025.03.023.
- [76] HUANG X Y, ZHAO C Z, KONG W J, et al. Tailoring polymer electrolyte solvation for 600 Wh kg^{-1} lithium batteries[J]. *Nature*, 2025, 646(8084): 343-350. DOI:10.1038/s41586-025-09565-z.
- [77] JI H J, XIANG J W, LI Y, et al. Liquid-liquid interfacial tension stabilized Li-metal batteries[J]. *Nature*, 2025, 643(8074): 1255-1262. DOI:10.1038/s41586-025-09293-4.
- [78] MI J S, YANG J, CHEN L K, et al. A ductile solid electrolyte interphase for solid-state batteries[J]. *Nature*, 2025, 647(8088): 86-92. DOI:10.1038/s41586-025-09675-8.
- [79] WU J Y, RAO Z X, LIU X T, et al. Polycationic polymer layer for air-stable and dendrite-free Li metal anodes in carbonate electrolytes[J]. *Advanced Materials*, 2021, 33(12): 2007428. DOI: 10.1002/adma.202007428.

- [80] MATSUDA S, ONO M, MYOJIN A. Irreversible structural changes in lithium electrodes accelerate capacity fading in lithium-metal-based rechargeable batteries[J]. ACS Applied Energy Materials, 2023, 6(4): 2524-2530.
- [81] CAO Z, ZHENG X Y, QU Q T, et al. Electrolyte design enabling a high-safety and high-performance Si anode with a tailored electrode-electrolyte interphase[J]. Advanced Materials, 2021, 33(38): 2103178. DOI:10.1002/adma.202103178.
- [82] WU H, QU J, YAN X L, et al. Revealing the underlying role of Li_2CO_3 in enhancing performance of oxyhalide-based solid-state batteries[J]. Advanced Materials, 2025, 37(33): 2502067. DOI: 10.1002/adma.202502067.
- [83] YANG M M, ZHANG J X, REN Z H, et al. $\text{Li}_2\text{CO}_3/\text{LiF}$ -Rich solid electrolyte interface stabilized lithium metal anodes for durable $\text{Li}-\text{CO}_2$ batteries[J]. Energy Storage Materials, 2024, 73: 103843. DOI:10.1016/j.ensm.2024.103843.
- [84] QIN N, JIN L M, LU Y Y, et al. Over-potential tailored thin and dense lithium carbonate growth in solid electrolyte interphase for advanced lithium ion batteries[J]. Advanced Energy Materials, 2022, 12(15): 2103402. DOI:10.1002/aenm.202103402.
- [85] LIU H, CHENG X P, CAO T C, et al. Achieving homogeneous Li deposition of 3D dendrite-free lithium metal anode through atomic layer deposition surface modification[J]. Materials Letters, 2023, 343: 134366. DOI:10.1016/j.matlet.2023.134366.