

超级电容器关键材料与器件专刊



电容型锂离子电池脉冲放电性能及其失效机理分析

齐玉泽^{1,2}, 邵笛¹, 魏亦佳¹, 王婕², 来庆学¹, 丁兵¹, 张校刚¹

(¹南京航空航天大学, 江苏省高效电化学储能技术重点实验室, 江苏 南京 210000; ²河海大学, 环境学院浅水湖泊综合治理与资源开发教育部重点实验室, 江苏 南京 210024)

摘要: 电容型锂离子电池在智能电网、电磁能装备、人工智能数据中心电源等领域的应用需求日益增长, 然而高倍率条件下容量快速衰减的问题制约其进一步发展。本文以正极 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ (NCM333)、负极硬碳(HC)的电容型电池为研究对象, 系统探究其在大功率条件下的失效机理。测试结果表明, 电容型电池在14 C的高电流密度下仍具有较高的放电容量, 且在10 C、40%放电深度(DoD)的浅充浅放条件下经40000圈循环后, 容量保持率仍在90%以上。然而, 在1 C充电、10C放电、100%DoD的高功率工况后, 电容型电池200圈循环后容量保持率仅为75%。采用扫描电子显微镜(SEM)、X射线光电子能谱(XPS)以及电感耦合等离子体发射光谱(ICP-OES)等手段, 对循环前后极片的结构、形貌、表面化学态及元素分布进行了表征。研究表明, 高功率循环导致正极颗粒发生破裂, NCM333层状结构发生了不可逆膨胀。循环后负极片上检出明显的Ni、Co、Mn元素, 证实了NCM333中过渡金属从正极溶出、跨隔膜迁移并沉积在负极的全过程。本研究揭示了NCM333||HC电容型电池在大功率条件下的失效机理, 为后续电容型锂离子电池的优化提供了方向。

关键词: 电容型锂离子电池; NCM333正极; 过渡金属溶出; 硬碳负极

doi: 10.19799/j.cnki.2095-4239.2026.0254

中图分类号: TM 911

文献标志码: A

文章编号: 2095-4239 (2026) 05-1573-08

Pulse discharge performance and failure mechanism of capacitor-type lithium-ion batteries

QI Yuze^{1,2}, SHAO Di¹, WEI Yijia¹, WANG Jie², LAI Qingxue¹, DING Bing¹, ZHANG Xiaogang¹

(¹Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Jiangsu Key Laboratory of Electrochemical Energy Storage Technologies, Nanjing 210000, Jiangsu, China; ²Key Laboratory of Integrated Regulation and Resource Development on Shallow Lakes, Ministry of Education, College of Environment, Hohai University, Nanjing 210024, Jiangsu, China)

Abstract: Capacitor-type lithium-ion batteries are attracting increasing interest for applications such as smart grids, electromagnetic energy systems, and power supplies for artificial intelligence data center. However, rapid capacity degradation under high-rate conditions remains a critical limitation to their further development. Herein, a capacitor-type battery using $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ (NCM333) as the cathode and hard carbon (HC) as the anode (NCM333||HC) is systematically investigated to elucidate its failure mechanisms under high-power conditions. The results demonstrate that the capacitor-type battery maintains a high

收稿日期: 2026-03-28; 修改稿日期: 2026-04-22。

基金项目: 国家重点研发计划青年科学家项目(2024YFB2408600)。

第一作者: 齐玉泽(2002-), 女, 硕士研究生, 研究方向为高功率电池回收, E-mail: 530316726@qq.com; 通信作者: 丁兵, 副教授, 研究方向为电化学储能材料与器件, E-mail: bingding@nuaa.edu.cn。

引用本文: 齐玉泽, 邵笛, 魏亦佳, 等. 电容型锂离子电池脉冲放电性能及其失效机理分析[J]. 储能科学与技术, 2026, 15(5): 1573-1580.

Citation: QI Yuze, SHAO Di, WEI Yijia, et al. Pulse discharge performance and failure mechanism of capacitor-type lithium-ion batteries[J]. Energy Storage Science and Technology, 2026, 15(5): 1573-1580.

discharge capacity even at a current rate of 14 C. Under shallow charge-discharge conditions of 10 C and 40% depth of discharge (DoD), the capacity retention remains above 90% after 40000 cycles. By contrast, under high-power operating conditions involving 1 C charging, 10 C discharging, and 100% DoD, the capacity retention decreases only to 75% after 200 cycles. The structure, morphology, surface chemical states, and elemental distribution of the electrodes before and after cycling were characterized using scanning electron microscopy, X-ray photoelectron spectroscopy, and inductively coupled plasma optical emission spectrometry. The results indicate that high-power cycling causes cracking of the cathode particles and irreversible expansion of the layered NCM333 structure. After cycling, Ni, Co, and Mn are detected on the anode, confirming the dissolution of transition metals from the cathode, their migration across the separator, and subsequent deposition on the anode. This study elucidates the failure mechanisms of the NCM333||HC capacitor-type battery under high-power conditions and provides insights for the future optimization of capacitor-type lithium-ion batteries.

Keywords: capacitor-type lithium-ion battery; NCM333 cathode; transition metal dissolution; hard carbon anode

随着智能电网、电磁能装备及人工智能数据中心电源的快速发展,储能系统的高功率输出能力面临更高要求。这类应用场景通常需要在短时间内实现高功率输出,并兼顾长续航与大功率放电的挑战^[1]。在众多化学电源体系中,基于三元层状氧化物正极(LiNi_xCo_yMn_zO₂, NCM)与硬碳(HC)负极的电容型锂离子电池,因其高能量密度、优异的循环稳定性及安全性,成为高功率储能技术领域的研究热点^[2-3]。研究者通过材料掺杂、电极结构设计及电解液配方调控等策略,提升了电容型电池的倍率性能与循环稳定性^[4]。然而,在长周期、高倍率工作条件下,电容型锂离子电池仍面临容量衰减、内阻增加、析锂与锂枝晶生长等问题^[5],限制了其发展。尽管已有相关研究探讨了电容型锂离子电池在常规循环条件下的失效机理,包括固态电解质界面层(SEI)过度生长、析锂、电解质分解、过渡金属溶出、电极颗粒开裂、集流体腐蚀及电导率损失等^[6]。但在高功率场景下,电池的失效机理仍需进一步探究,以揭示性能衰退的根本原因,为电容型锂离子电池的优化设计提供理论指导。

近年来,研究人员已从表面重构、过渡金属溶出、锂含量差异诱导开裂以及高电压串扰等多角度揭示了NCM材料的失效机制,为理解其性能衰减提供了重要基础。Vettori等^[7]研究了NCM正极材料在高电压下的退化机制,发现在高电位保持过程

中,正极电解质界面层(CEI)在初期减薄后保持稳定,而岩盐相重构层(SRL)持续非均匀生长。空间分布不均匀的SRL导致局部电流收缩效应,进而引起电荷转移阻抗的非线性增长,明确了SRL主导的NCM动力学性能衰减。同时,NCM622材料中过渡金属溶出与死锂形成密切相关,过渡金属沉积与死锂形成相互交织,共同加剧SEI增厚及界面阻抗上升,最终导致容量突然衰减^[8]。此外,在2 C快充条件下,NCM正极易发生不可逆容量损失与颗粒裂纹现象。研究发现,正极颗粒内部与表面的锂含量出现明显差异,由此引发的晶格应力失配导致裂纹萌生与扩展^[9]。电解液通过裂纹渗透,颗粒表面发生岩盐相变及CEI生长,同时体相发生不可逆锂损失及Li⁺/Ni²⁺混排,进一步恶化锂离子扩散动力学。Klein等^[10]探讨了NCM523||石墨全电池在4.5 V高电压下的失效机制,发现失效源于正极溶出的过渡金属迁移至负极并沉积,过渡金属沉积物成为锂枝晶生长的优先位点,引发SEI严重破坏以及活性锂的不可逆消耗,最终导致微短路和电池失效。

然而,高功率工况本身具有复杂性。大电流密度不仅加剧极化,还导致电池内部温度升高、应力累积,多种因素相互耦合,使得电容型锂离子电池在高功率条件下的失效机制比常规条件更为复杂。因此,有必要对高功率循环前后的正极材料进行系

统对比分析,深入探究其失效机理,为电容型锂离子电池的性能优化提供理论指导。目前,已有研究主要关注10 C以下的电池循环导致的失效机制,仍缺乏针对NCM333体系的在10 C高功率循环下正极材料的失效路径的研究。基于此,本文以 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ (NCM333)正极、HC负极的电容型电池为研究对象,聚焦于10 C高功率循环导致的失效机理,并结合扫描电子显微镜(SEM)、X射线衍射(XRD)、X射线光电子能谱(XPS)、场发射透射电子显微镜(TEM)和电感耦合等离子体发射光谱(ICP-OES)等表征手段,系统分析循环前后正极材料的形貌、晶体结构、表面化学态及元素分布变化,探究高功率循环过程中的失效机理,以期对电容型三元电池的性能优化提供理论依据。

1 实验

1.1 材料制备

采用叠片式电容型电池结构,制备了容量为2 Ah的电容型电池。正极浆料由NCM333活性材料、活性炭、导电炭黑(Super P)、碳纳米管(CNT)和聚偏氟乙烯(PVDF)按质量比(87:8:2:1.5:1.5)在N-甲基吡咯烷酮(NMP)中均匀混合后,涂覆于铝箔上,单面涂覆面载量约为 10 mg/cm^2 。负极浆料由硬碳(HC)活性材料、CNT、PVDF按质量比97:1:2在NMP溶剂均匀混合后,涂覆于铜箔上,单面涂覆量为 5.2 mg/cm^2 。电解液为1 mol/L LiPF_6 的EC/EMC/PC(体积比为20:60:20)溶液。将正极片、负极片及隔膜经叠片工艺组装成电芯,注入电解液后封装成型、化成。

1.2 材料表征

采用BRUKER公司D8 Advance系列X射线衍射仪(Cu K_α 辐射)对原始及循环后正极片进行晶体结构分析,扫描范围为 $10^\circ\sim 90^\circ$,扫描速率为 $2.02^\circ/\text{min}$ 。采用GSAS和Jade软件进行物相分析和晶胞参数精修。采用日立S4800场发射扫描电子显微镜观察电极材料表面及截面形貌。透射电子显微镜分析采用日本电子JEM-2100f场发射透射电子显微镜。采用安捷伦ICPOES 730型电感耦合等离子体发射光谱仪对循环前后正负极片进行元素含量定量分析,样品经微波消解后测试。XPS采用美国Perkin-Elmer公司PHI550型X射线光电子能谱

仪(Al K_α 辐射, $h\nu=1486\text{ eV}$),分析循环后正极表面化学态,以C 1s(284.8 eV)为标准进行荷电校正,采用Avantage软件进行分峰拟合。

1.3 电化学性能测试

恒电流充放电测试通过武汉蓝电电子股份有限公司CT3002K的蓝电电池测试系统完成。电池测试前静置12 h,在循环及倍率测试过程中先以小电流活化3圈,充放电测试的电压范围为2.7~4.2 V。在倍率性能测试中,电流密度设置为1 C、5 C、10 C、12 C及14 C。所有测试均处于 25°C 恒温烘箱中进行。

2 结果与讨论

2.1 初始材料表征与电化学性能

NCM333正极材料的原始形貌与晶体结构如图1所示。从图1(a)的SEM图像可以看出,该材料呈现典型的多晶二次颗粒形貌,粒径分布较为均匀。图1(b)、(c)分别展示了高倍数SEM图像及EDS元素分布,进一步揭示了原始颗粒的表面细节。可见,颗粒表面完整,由一次颗粒紧密堆积而成,Ni、Co、Mn元素在颗粒内均匀分布,无明显杂质相。图1(d)为Rietveld精修结果,所有衍射峰均与标准卡片匹配良好,特征峰尖锐,表明材料具有典型的 $\alpha\text{-NaFeO}_2$ 层状结构。精修得到的晶胞参数为: $a=0.285758\text{ nm}$ 、 $c=1.422273\text{ nm}$,晶胞体积 $V=0.100580\text{ nm}^3$, $c/a=4.977$ 。此外, $\text{Li}^+/\text{Ni}^{2+}$ 混排度仅为1.5%,进一步证实了该材料具有良好的结晶性和较高的层状有序度。综上所述,本研究所采用的正极材料为高纯度、结晶性良好的NCM333材料。

以容量2 Ah的高功率NCM333||HC电容型锂离子电池为研究对象,系统评估了其核心性能。高倍率性能测试结果如图2所示。从图2(a)可以看出,随着放电倍率从1 C提升至14 C,电池的放电容量逐渐降低。值得注意的是,即使在14 C的高倍率条件下,电池仍能释放出1.33 Ah的可观容量,表明该电池适用于高功率应用场景。通过容量-电压和温度关系曲线[图2(b)]可以看到,在10 C和14 C放电过程中,电池温度急剧上升。在14 C放电过程中,电池表面温度达 55°C 。在10 kW/kg的恒功率放电条件下,电池可持续放电10 s[图2(c)],能够满足短时高功率输出要求。随后的高倍率长期循环测试中,

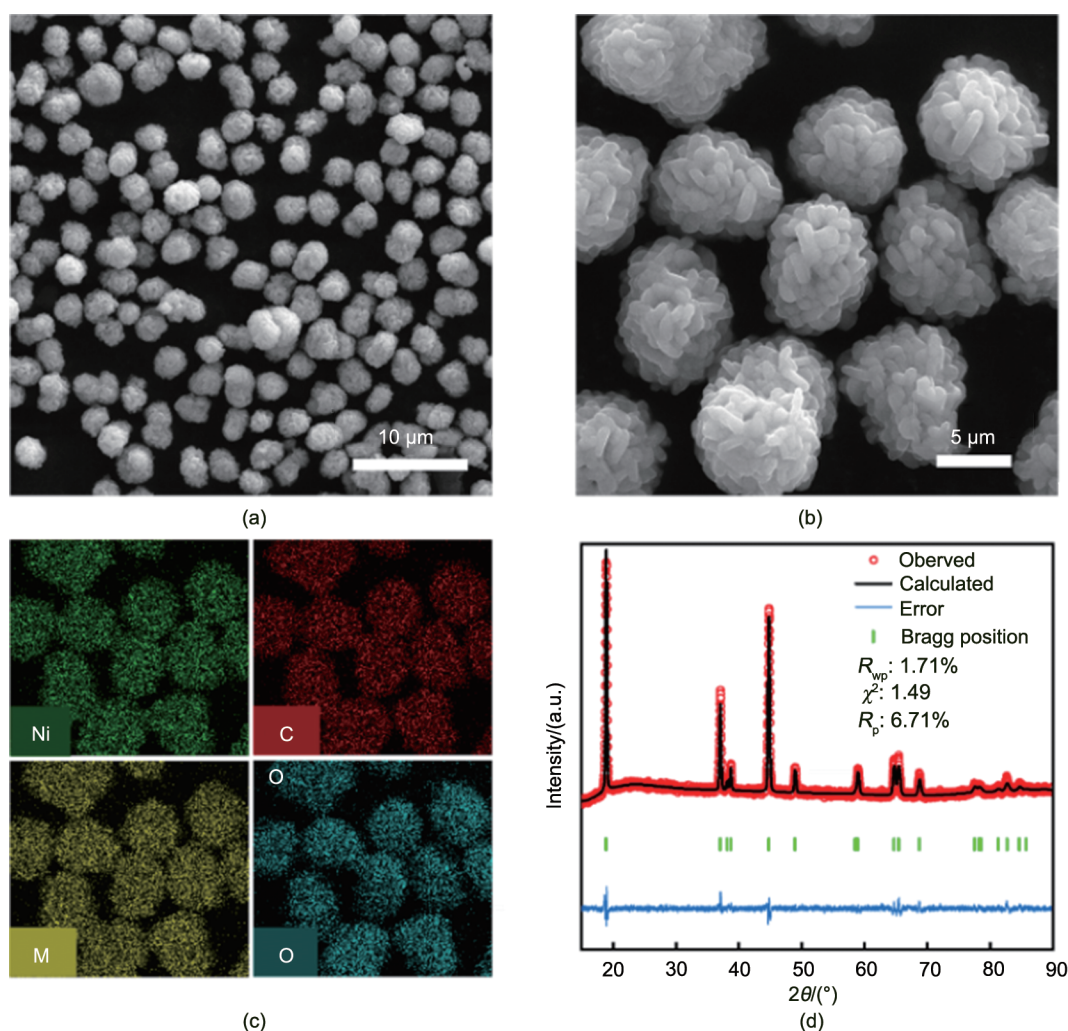


图1 NCM333材料的 (a) (b) SEM 照片、(c) 元素分布以及 (d) XRD 图谱及其 Rietveld 精修结果
 Fig. 1 Pristine NCM333 material: (a) (b) SEM images, (c) elemental mapping, and (d) XRD pattern with Rietveld refinement result

在 10 C 充放、40%DoD 的浅充浅放条件下，电池经过 40000 圈循环后仍展现出卓越的容量保持能力，库仑效率始终维持在 100% 左右[图 2(d)]。然而，当测试条件变为更严苛的 1 C 充电、10 C 放电、100%DoD 时，电池容量出现快速衰减，200 圈后容量保持率为 75%[图 2(e)]。图 2(f) 为对应的充放电曲线，可以看出循环初期电池的充电行为相对稳定；随着循环进行至 100 圈和 200 圈，整个充电曲线逐渐向高电压方向移动，表明电池极化显著增大。同时，放电电压平台降低，放电容量明显减少，反映出活性物质利用率下降。上述研究表明，高功率循环导致了特定的失效机制。为揭示其内在机理，对循环后的电池进行了拆解，并开展了多尺度的表征分析，以探索电容型锂离子电池的循环失

效机理，为后续研究提供理论帮助。

2.2 循环后正极材料失效分析

为探究电容型锂离子电池的失效机制，对比分析了循环前后的正极材料。图 3(a) 为循环前正极极片的数码照片，可以观察到正极极片表面平整光滑，色泽均匀，无明显缺陷。SEM 图像显示，NCM333 颗粒之间存在一定空隙，无团聚现象，活性物质分布均匀[图 3(b)、(c)]。相比之下，经 100%DoD 循环后的极片[图 3(d)]表面呈灰黑色，色泽不均，局部区域颜色变浅，表面存在残留附着物，整体不平整，边缘出现明显的活性物质脱落现象。与原始 NCM333 材料中完整、光滑的二次球形貌不同，循环后的 NCM333 颗粒发生破碎，表面出现裂纹，同时存在附着物并发生团聚[图 3(e)、(f)]。

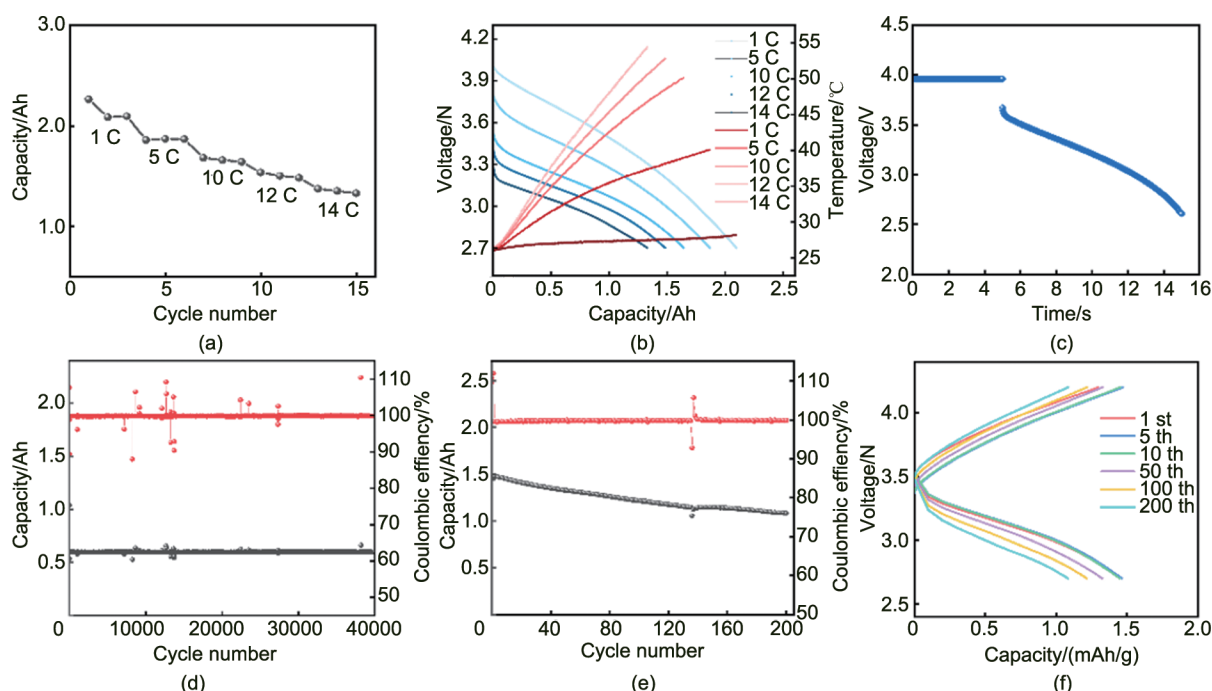


图 2 (a) 倍率性能; (b) 不同倍率下的放电曲线及表面温度曲线; (c) 10 kW/kg 恒功率脉冲放电性能; (d) 10 C 充放、40%DoD 条件下的循环性能; 1 C 充电/10 C 放电、100%DoD 条件下; (e) 循环性能与 (f) 充放电曲线
 Fig. 2 (a) Rate performance curves; (b) Discharge curves and surface-temperature curves at different rates; (c) Constant power pulse discharge performance at 10 kW/kg; (d) Cycling performance at 10C with 40% DoD; (e) Cycling performance curves and (f) charge-discharge curves at 1C charge/10C discharge with 100% DoD

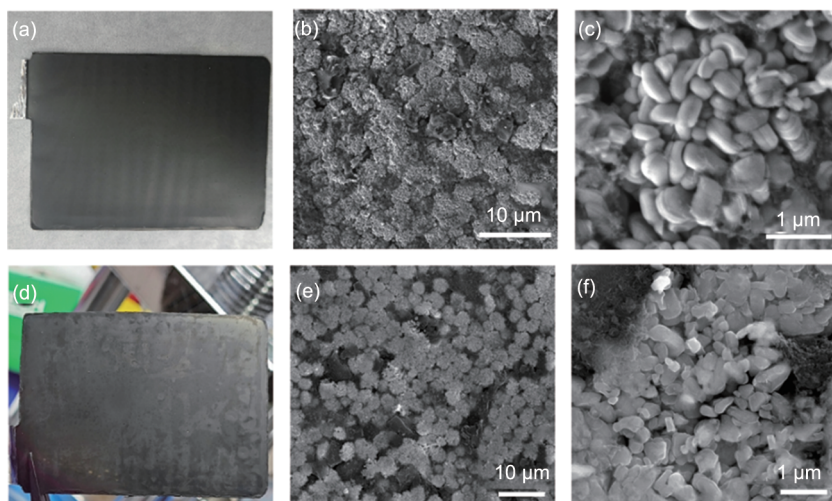


图 3 循环前正极极片的 (a) 数码照片与 (b) (c) SEM 照片; 循环后正极极片的 (d) 数码照片与 (e) (f) SEM 照片
 Fig. 3 (a) Digital photograph and (b) (c) SEM images of NCM333 cathode before cycling; (d) Digital photograph and (e) (f) SEM images of NCM333 cathode after cycling

XRD 分析进一步表明, 循环过程中正极材料的晶体结构发生了变化。与原始样品相比, (003) 与 (104) 晶面衍射峰左移, 衍射角 2θ 减小, 意味着晶面间距 d 增大, 表明 NCM333 层状结构的 c 轴参数发生了不可逆膨胀。这一变化加剧了晶胞的各向异性应力, 导致晶格滑移和微裂纹的产生^[11]。同

时, 用于衡量层状结构有序性的 (108) 和 (110) 晶面衍射峰发生明显分离, 表明材料整体的层状框架尚未坍塌^[12]; 但 (108) 峰向低角度偏移, (110) 峰向高角度偏移, 这一现象同样反映出 c 轴晶格参数增大^[13]。上述结构劣化与 SEM 分析中观察到的颗粒粉化和微裂纹现象一致。图 4(b) 为循环后正极颗粒

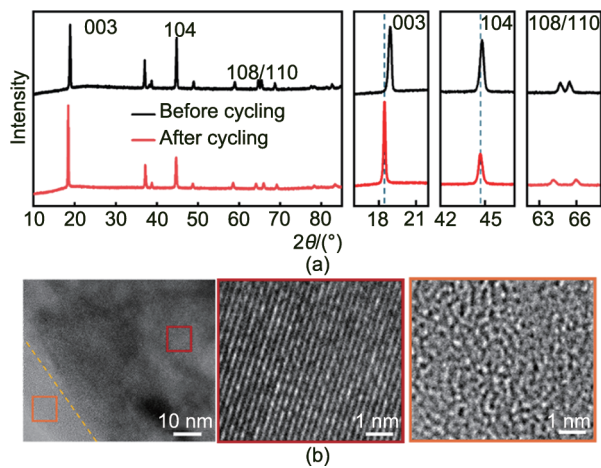


图4 (a) 循环前后 NCM333 正极极片的 XRD 图谱; (b) 循环后 NCM333 材料的 TEM 照片
Fig. 4 (a) XRD patterns of the NCM333 cathode before and after cycling; (b) TEM images of the NCM333 material after cycling

的 TEM 照片。循环后颗粒内部仍保留明显的层状结构特征, 而颗粒表面区域则呈现杂乱无序的晶格条纹, 颗粒表面被 3~5 nm 的非晶态物质包裹。这可能是层状结构向岩盐相转变的体现, 与 XRD 观察到的结构退化相互印证。

晶体结构的退化往往伴随着表面元素化学态的改变。为探究循环过程中正极界面成分的演变, 对循环后正极极片表面进行了 XPS 测试, 测试结果如图 5 所示。由 C 1s 谱图可以看到, C—O (约 286.3 eV)、C=O/C—O—C (约 287.6 eV) 以及

O—C=O (约 288.9 eV) 特征峰的相对强度较高 [图 5(a)], 表明循环过程中正极表面覆盖有一层正极电解质界面层 (CEI), 其主要由电解液分解产生的含氧醚类与酯类产物组成^[14]。该有机层离子电导率较低, 会增加离子迁移阻力, 从而导致极化增加。O 1s 谱图中, 约 532 eV 附近的 C=O 相关峰强度较高 [图 5(b)], 进一步证实了 CEI 层的存在, 与 C 1s 结果吻合良好。在 F 1s 谱图 [图 5(c)] 中, 除源自 PVDF 的有机氟信号外, 在结合能约为 684.8 eV 处检测到一个强度较高的峰, 该峰归属于 LiF, 表明正极界面处电解质发生了氧化分解。此外, Li 1s 谱图 [图 5(d)] 中也观察到 LiF 的对应信号, 进一步佐证了其存在。P 2p 谱图中 Li_xPF_y 组分的信号较弱 [图 5(e)], 反映出锂盐发生了明显的分解。Ni 2p 谱图出现了 Ni²⁺ 和金属 Ni 的信号 [图 5(f)], 表明正极材料表面的镍离子发生了不可逆的还原, 并可能伴随过渡金属的溶出。Ni²⁺ 与 Li⁺ 半径相近, 会迁移到锂层中, 其迁移倾向高于 Mn、Co 离子, 从而阻碍 Li⁺ 扩散并降低电池性能。此外, 循环后正极表面的 Co 呈现 Co³⁺ 和 Co²⁺ 混合价态 [图 5(g)], Mn 主要表现为 Mn³⁺ [图 5(h)]。同时, 阳离子迁移会导致 NCM333 发生从层状结构到尖晶石结构或岩盐相的不可逆相变, 进而引发容量衰减^[15]。上述结果表明, 颗粒的破碎不仅直接损失了部分活性物质, 还会诱发后续的界面副反应, 进一步加速电容型电池失效。

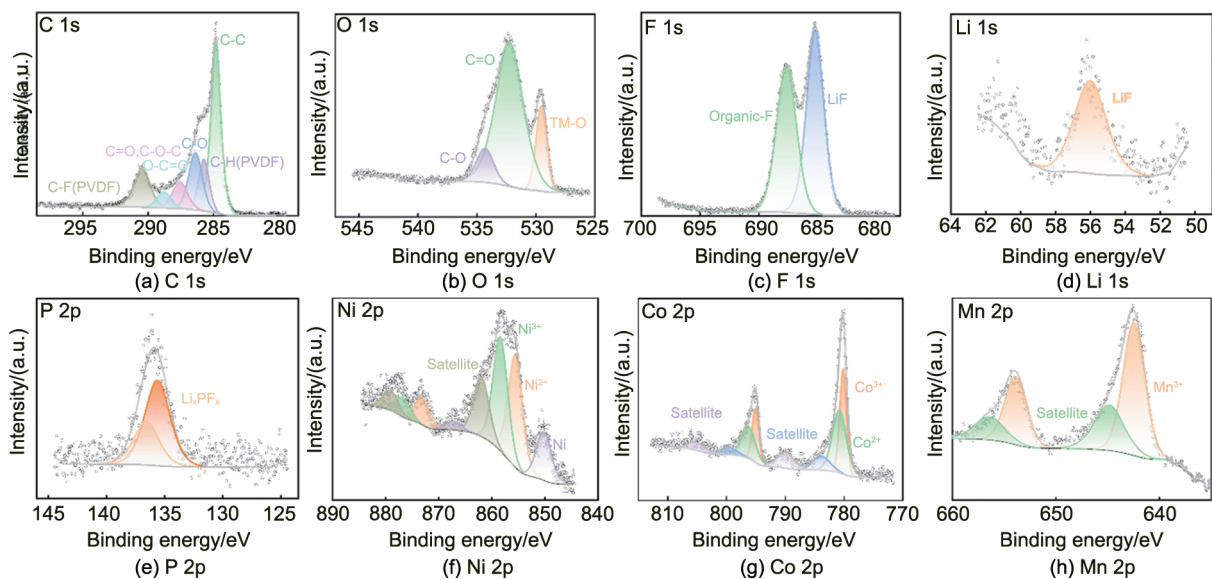


图5 循环后 NCM333 正极 XPS 谱图

Fig. 5 XPS spectra of NCM333 cathode after cycling

为进一步验证正极发生过渡金属溶出现象，对循环前后正极极片进行ICP测试，结果如图6(a)~(d)所示。与原始极片相比，循环后正极极片中Li、Ni、Co、Mn四种元素的含量均有不同程度的下降。这一结果表明，在高倍率循环过程中，正极材料中的过渡金属溶出，导致正极主体结构中的活性物质流失，同时伴随着活性锂的损失，进而加剧电池容量的衰减。图6(e)为循环后负极的数码照片及SEM图像。可以看到表面存在明显的色泽差异，分布有深浅不一的斑块与痕迹，且表面较为粗糙。对应不同区域的SEM图像[图6(f)]进一步显示，极片表面存在深灰色斑点，覆盖一层不均匀的沉积

物，局部可见结晶状白色物质。有研究认为，深灰色斑点是过度生长的SEI与过渡金属沉积物共同覆盖的硬碳颗粒^[9]。为进一步明确过渡金属在负极的沉积情况，对循环后负极极片进行了ICP测试，结果如图6(g)所示。在负极极片上检测到4种元素存在，直接证实了过渡金属从正极溶出迁移至负极并发生沉积的现象。综上所述，在高功率循环过程中，NCM333正极发生了不可逆的过渡金属溶出。过渡金属离子从正极晶格中溶出，溶出的过渡金属离子迁移到负极并沉积。这一过程与正极结构退化、界面副反应相互耦合，共同导致电池容量的快速衰减。

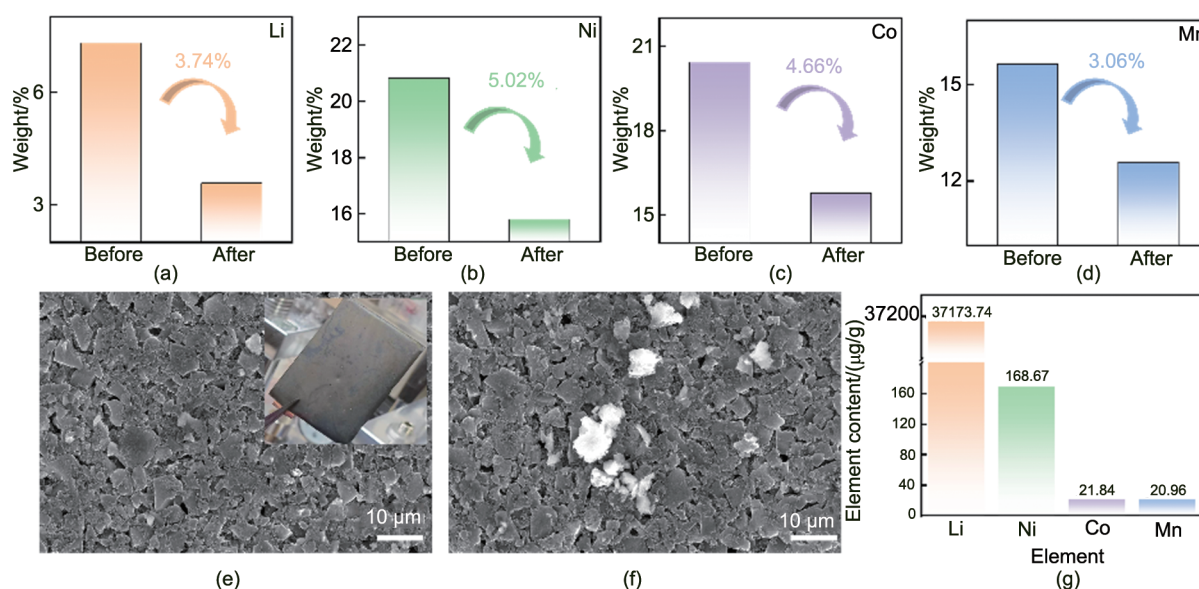


图6 循环前后NCM333正极极片中不同元素含量变化：(a) Li, (b) Ni, (c) Co及(d)Mn；(e, f) 循环后硬碳负极极片的SEM照片（插图：数码照片），(g) 循环后硬碳负极的元素含量

Fig. 6 Element contents on NCM333 cathode before and after cycling: (a) Li, (b) Ni, (c) Co, (d) Mn; (e, f) SEM images of HC anode after cycling (inset: digital photograph), (g) elemental content of HC anode after cycling

3 结论

综上所述，高倍率循环条件下，NCM333正极材料的失效表现为多因素耦合的复杂过程。首先，锂离子快速脱嵌导致颗粒发生破碎，暴露出大量新鲜界面，加剧了电解液与电极材料之间的副反应，并促使过渡金属离子从正极晶格中溶出。同时，锂离子的反复脱嵌引起正极材料晶格畸变与结构失稳。TEM分析表明，循环后NCM333颗粒表面形成了厚度约3~5 nm的岩盐相。溶出的Ni、Co、Mn离子穿过隔膜迁移至负极并沉积，破坏负极界

面稳定性，造成活性锂的进一步损失。因此，颗粒破碎、过渡金属溶出与体相结构退化三者相互耦合，共同导致电容型电池在高功率条件下的容量快速衰减。本工作系统揭示了电容型锂离子电池在高功率循环下的失效机制，为后续电容型电池的性能优化提供了理论依据。

参考文献

- [1] WANG C Y, LIU T, YANG X G, et al. Fast charging of energy-dense lithium-ion batteries[J]. Nature, 2022, 611(7936): 485-490. DOI: 10.1038/s41586-022-05281-0.

- [2] LIU W Z, ZHENG Z Q, ZHANG Y K, et al. Regeneration of $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Mn}_z\text{O}_2$ cathode materials from spent lithium-ion batteries: A review[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2023, 963: 171130. DOI: 10.1016/j.jallcom.2023.171130.
- [3] XU C R, PENG B, YANG W J, et al. High energy density lithium battery systems: From key cathode materials to pouch cell design [J]. *Chemical Society Reviews*, 2025, 54(21): 10245-10303.
- [4] ASGHARI P, BOORBOOR AJDARI F, ABBASI F, et al. Advanced strategies to boost sustainable high-rate Ni-rich cathodes toward durable LIBs[J]. *Progress in Materials Science*, 2026, 156: 101574. DOI: 10.1016/j.pmatsci.2025.101574.
- [5] LI A M, WANG Z Y, LEE T, et al. Asymmetric electrolyte design for high-energy lithium-ion batteries with micro-sized alloying anodes [J]. *Nature Energy*, 2024, 9(12): 1551-1560. DOI: 10.1038/s41560-024-01619-2.
- [6] DONG Y H, LI J. Oxide cathodes: Functions, instabilities, self healing, and degradation mitigations[J]. *Chemical Reviews*, 2023, 123(2): 811-833.
- [7] VETTORI K, SCHRÖDER S, AHRENS L, et al. Chemical and structural degradation of single crystalline high-nickel cathode materials during high-voltage holds[J]. *Advanced Energy Materials*, 2025, 15(33): 2502148. DOI: 10.1002/aenm.202502148.
- [8] ADHITAMA E, DEMELASH F, BRAKE T, et al. Assessing key issues contributing to the degradation of NCM-622||Cu cells: Competition between transition metal dissolution and "dead Li" formation[J]. *Advanced Energy Materials*, 2024, 14(19): 2303468. DOI: 10.1002/aenm.202303468.
- [9] QU J Y, XIE Z, BICKET I C, et al. Insights into fast-charge-induced cracking and bulk structural deterioration of Ni-rich layered cathodes for lithium-ion batteries[J]. *ACS Nano*, 2025, 19(37): 33202-33211.
- [10] KLEIN S, VAN WICKEREN S, RÖSER S, et al. Understanding the outstanding high-voltage performance of NCM523||graphite lithium ion cells after elimination of ethylene carbonate solvent from conventional electrolyte[J]. *Advanced Energy Materials*, 2021, 11(14): 2003738. DOI: 10.1002/aenm.202003738.
- [11] LIU L, QU Y D, XIE Z C, et al. Dual-modified engineering suppressed the formation of Li-concentration gradient and oxygen vacancies for single-crystal Ni-rich layered cathodes[J]. *Applied Surface Science*, 2024, 653: 159398. DOI: 10.1016/j.apsusc.2024.159398.
- [12] ZHU H L, LI Q F, GONG X L, et al. Enhanced high voltage performance of chlorine/bromine co-doped lithium nickel manganese cobalt oxide[J]. *Crystals*, 2018, 8(11): 425. DOI: 10.3390/cryst8110425.
- [13] ATEŞ M N, ZENGIN F, WHBA R, et al. Mechanistic insights into cathode-driven capacity degradation of NMC111/graphite pouch cells under long-term cycling[J]. *Electrochimica Acta*, 2025, 543: 147611. DOI: 10.1016/j.electacta.2025.147611.
- [14] CHOI M S, KANG S G, CHOI J, et al. Residual monomer-induced side reactions in gel polymer electrolytes: Unveiled high-Ni cathode failure in lithium batteries[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2025, 64(17): e202424568. DOI: 10.1002/anie.202424568.
- [15] RUAN Y L, SONG X Y, FU Y B, et al. Structural evolution and capacity degradation mechanism of $\text{LiNi}_{0.6}\text{Mn}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{O}_2$ cathode materials[J]. *Journal of Power Sources*, 2018, 400: 539-548. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2018.08.056.