



全固态电池中界面的结构演化和物质运输

拱越 谷林

Structural evolution and matter transportation of the interface in all-solid-state battery

Gong Yue Gu Lin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 226801 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201160

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201160>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

低维限域结构中水与物质的运输

Water and mass transport in low-dimensional confined structures

物理学报. 2019, 68(1): 018801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182131>

用于空间碎片探测的百赫兹3.31 J高光束质量全固态Nd: YAG激光器

A 100 Hz 3.31 J all-solid-state high beam quality Nd:YAG laser for space debris detecting

物理学报. 2017, 66(5): 054205 <https://doi.org/10.7498/aps.66.054205>

界面结构对Cu/Ni多层膜纳米压痕特性影响的分子动力学模拟

Influence of interface structure on nanoindentation behavior of Cu/Ni multilayer film: Atomic scale simulation

物理学报. 2018, 67(19): 190202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180958>

二维原子晶体的低电压扫描透射电子显微学研究

Low voltage scanning transmission electron microscopy for two-dimensional materials

物理学报. 2017, 66(21): 217303 <https://doi.org/10.7498/aps.66.217303>

专题：固态电池中的物理问题

全固态电池中界面的结构演化和物质运输*

拱越¹⁾ 谷林^{1)2)3)†}

1) (中国科学院物理研究所, 先进材料与结构分析实验室, 北京 100190)

2) (中国科学院大学, 物理科学学院, 北京 100049)

3) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

(2020年7月21日收到; 2020年10月24日收到修改稿)

全固态电池中科学问题的本质在于引入的固态电解质的特性及全新的固-固界面的存在. 从构-效关系出发, 固-固界面和电解质自身的结构演化与物质运输过程决定了全固态电池的性能. 随着固态电解质材料研究的不断丰富, 目前全固态电池中的问题主要集中在固-固界面, 界面处的组成和结构限制了全固态电池的性能. 根据固-固界面接触的情况不同, 本文按照固-固界面物理接触、化学接触和表面改性处理这三个层次总结与讨论全固态电池中固-固界面处的结构及其物质运输. 最后从功能材料功能性起源角度讨论局域对称性与宏观复杂体系下材料性能的关联.

关键词: 全固态电池, 界面结构, 物质运输, 电子显微学**PACS:** 68.37.-d, 68.37.Lp, 82.47.Aa**DOI:** 10.7498/aps.69.20201160

1 引言

锂电池作为储能器件在当今社会中已经成为必需品. 随着社会的发展和科技的进步, 对锂电池的能量密度和安全性的要求也越来越高, 使用固态电解质替代可燃的液态电解质一直以来被人们看作是最有希望的锂电池发展方向. 但是固态电解质的存在也引入了新的问题, 如固态电解质的锂离子电导低、功率密度低、循环性能差、固-固界面接触不良以及依然还会存在的锂枝晶等^[1]. 全固态电池的科学问题在于固态电解质本身和电极-电解质界面的性质. 固态电解质本身的性质主要取决于自身的离子电导、电子电导和自身结构. 随着越来越多的固态电解质材料的出现, 固态电解质本身的电导、晶界结构^[2]等已不再是限制固态电池发展的主

要问题. 因此固-固界面是决定全固态电池性能的关键所在. 物质结构决定了性能, 功能材料功能性起源于局域对称性和场. 在凝聚态物理研究中, 局域对称性由晶格、电荷、轨道和自旋这四个自由度所决定^[3]. 全固态电池中界面处的科学问题与局域对称性息息相关, 电荷和物质的运输都由局域对称性所决定^[4]. 因此本文将从基本的构-效关系出发, 着重整理并讨论全固态电池中界面的结构演化和物质运输.

固-固界面的重要性众所周知, 目前已有一定数量的文献综述类文章对界面中存在的具体问题总结^[5-8]. 想要对固-固界面进行充分的讨论需要对纷繁复杂的界面情况进行有效的汇总分类. 目前常见的分类依据有根据固态电解质种类进行分类, 如氧化物、硫化物、聚合物固态电解质等. 还有如薄膜电池等依据全固态电池形态分类的. 如依照

* 中国科学院前沿科学重点研究项目 (批准号: QYZDB-SSW-JSC035)、国家自然科学基金 (批准号: 51672307, 51421002) 和博士后创新人才支持计划资助的课题.

† 通信作者. E-mail: l.gu@iphy.ac.cn

固态电解质和电极材料对应来分类,不同类型的电极和电解质材料相互组合可以有成千上万种组合,每一种都会有独自的特性. 如以无疑会长篇累牍,抓不住重点. 而类似于薄膜全固态电池这一概念是基于电池加工方法和形态,它可以改善界面的接触情况,但本质上并不改变界面和材料内部的物质运输机理. 这就要求我们对固-固界面处的本质进行更深层次的挖掘.

由于固-固界面的存在,界面处电极侧、电解质侧和电极电解质接触的中心会与液态电池的界面处产生本质上不同的差异. 这些差异直接影响了锂离子和电子的运输通道. 固-固界面的产生源自于电极和固态电解质之间的接触,以接触后是各自维持原状态还是发生化学反应为依据,物质之间的接触可以分为物理接触和化学接触. 因此对于全固态电池中固-固界面的讨论可以分为电极与电解质之间物理接触、电极与电解质之间发生化学反应以及对电极与电解质进行表面改性后的固-固界面这三种情况.

2 固-固界面处的结构演化和物质运输

根据固-固接触的不同形式,本节从电极与电解质之间发生物理接触、化学接触到表面改性后的界面这三个层次出发讨论固-固界面的结构演化和物质运输. 这三个层次不仅涵盖了大部分固-固界面的情况,也符合在全固态电池的研究中所经历的发现问题、解决问题的过程.

2.1 电极、电解质物理接触

固-固接触与固-液接触最明显的区别在于固-液接触是以浸润形式存在的“软”接触,而固-固接触是很难充分贴合的“硬”接触. 这就直接造成了在全固态电池中锂离子通道的减少和应力堆积的问题. 在我们之前的研究中发现发现在 $\text{LiCoO}_2(\text{LCO})/\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}(\text{LLZO})$ ^[9] 和 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4(\text{LNMO})/\text{LLZO}$ 体系^[10] 中都存在由于固-固界面点接触造成的正极侧结构的巨大改变,进而改变了物质传输通道. 其中在 LCO 正极材料中发现在应力和界面有限位置的锂离子传输通道的情况下,单晶 LCO 通过形成由孪晶界和反相界面相连的纳米多晶结构(见图 1),改变了锂离子在电极侧的传输路径,如图 2(a) 所示. 在 LNMO 正极材料中由于固-固界面不均匀接触导致的电极材料脱锂不均匀现象,进而造成局域过渡金属迁移堵塞锂离子传输通道,如图 2(b) 所示.

物质之间即使是物理接触也不是绝对的没有物质交换和反应发生,只是在常规环境下进行的速度非常缓慢而已. 同样是 LCO/LLZO 固-固物理接触体系,常温工作过程中没有明显界面新相生成的情况下^[11], Vardar 等^[12] 通过在不同温度下对固-固界面结构进行观测发现对材料在低温、短时、无 CO_2 环境下进行预处理,可以实现界面处的高 Li 离子电导和容量. 进一步对界面表征发现,控制界面处 Li_2CO_3 的生成对全固态电池性能至关重要,如图 2(c) 所示. 此外,在电池工作过程中物质也会

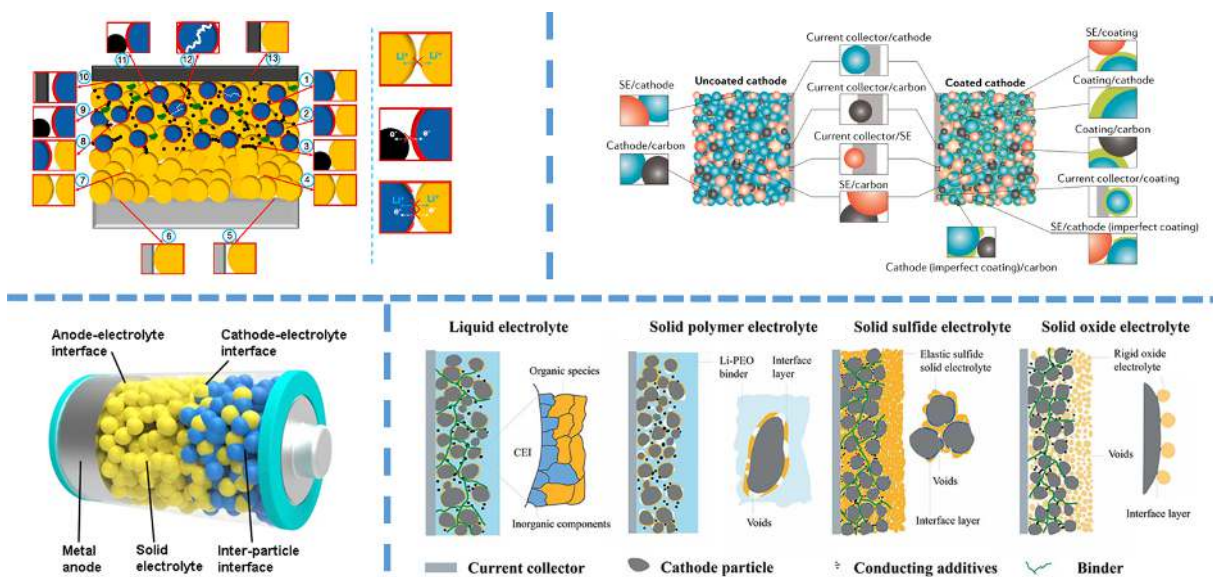


图 1 全固态电池中存在的多种界面结构示意图^[5-8]

Fig. 1. Schematics of different interface structures in all-solid-state battery^[5-8].

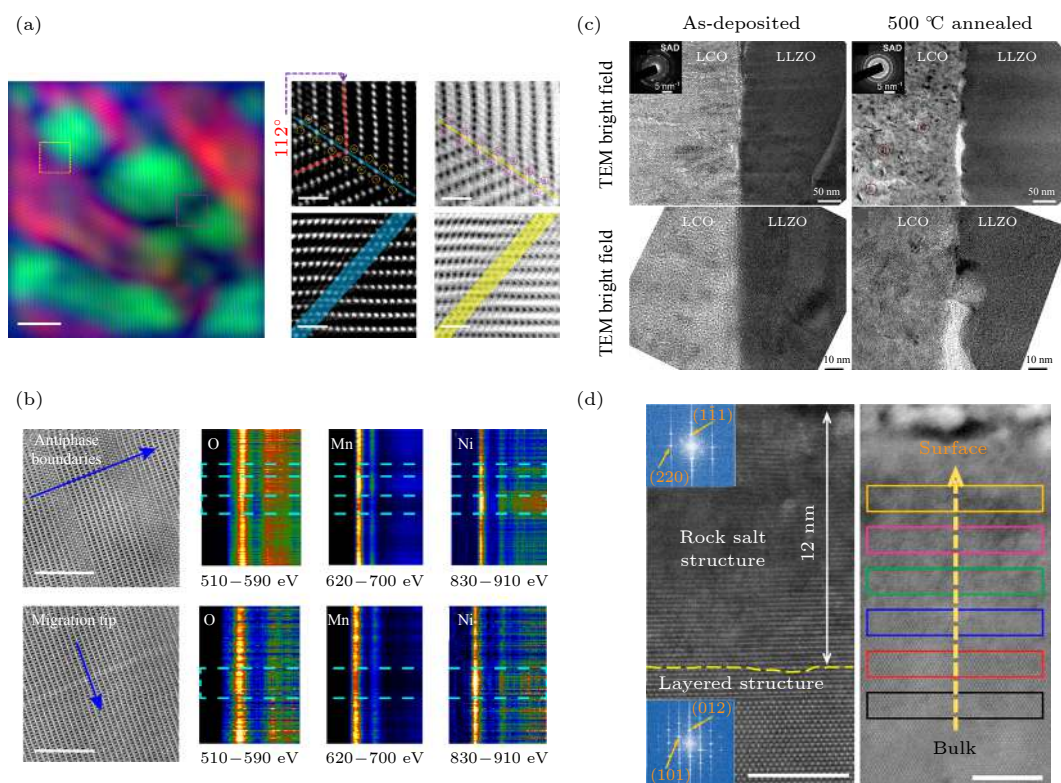


图 2 物理接触界面的结构和物质运输 (a) LCO 正极在全固态电池中结构演化^[9]; (b) LNMO 正极材料在全固态电池中的结构演化^[10]; (c) LCO/LLZO 固-固接触界面结构和物质交换的调控^[12]; (d) NCM811/LGPS 固-固接触界面在工作中的结构演化和物质交换^[13]

Fig. 2. Structure and material transport of the physical contact interface: (a) The structural evolution of the LCO positive electrode in an all-solid-state battery^[9]; (b) the structural evolution of LNMO cathode materials in all-solid-state batteries^[10]; (c) regulation of LCO/LLZO solid-solid contact interface structure and material exchange^[12]; (d) structural evolution and material exchange of NCM811/LGPS solid-solid contact interface during operation^[13].

发生交换导致结构演化, 从而改变界面的性质. Li 等^[13] 在富 Ni 层状正极材料 $\text{LiNi}_{0.8}\text{Mn}_{0.1}\text{Co}_{0.1}\text{O}_2$ (NCM811) 和硫化物固态电解质 $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ (LGPS) 之间发现, 随着充放电的进行电极和电解质会同时发生反应, LGPS 发生不可逆转变生成杂质 Li_2S , 正极侧表面转变为岩盐结构, 堵塞了锂离子传输通道 (如图 2(d) 所示), 同时生成裂纹使全固态电池性能下降.

由此可知, 固-固界面之间的物理接触对电池的性能影响极大. 无论是通过高压制备全固态电池还是通过薄膜生长来提高物理接触的面积, 都难以从本质上实现固-固之间的紧密接触, 因此在循环过程中由于物质交换和应力积累等因素, 固-固之间的物理接触情况会变得越来越差. 因此对界面进行改性预处理成为一条必由之路.

2.2 电极、电解质化学接触

对于化学势不匹配的两种电极和电解质材料,

当他们相互接触后可能会直接自发地发生化学反应, 这在全固态金属锂电池中负极和固态电解质的界面处尤为常见. 如果反应生成物是良好的锂离子导体同时是电子绝缘体, 那么生成物会形成良好的固体电解质膜, 使固-固接触更加充分, 还能隔绝电极和固态电解质进一步反应, 对全固态电池是有益的, 反之若反应不受控制则损坏电池结构. 电池实际工作中电压范围上下超过固态电解质电化学窗口进而发生的电化学反应不属于正常的电池工作状态, 本质上属于化学反应的分类之下, 故不在本小节主要进行讨论. 但是根据固态电解质电压窗口的具体情况搭配合适的电极材料, 通过调节高低电压生成有益的固体电解质膜也是一种界面改性的思路^[14].

如上所述, 发生化学接触反应的生成物可能对固态电池有益也可能起到负作用, 下面就从结构和物质运输的角度分别举例说明有益和有害的反应. 以 $\text{Li}/\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ (LAGP) 界面为例说明

反应是负作用的情况, Hartmann 等^[15] 在 Li/LAGP 界面发现, Li 与固态电解质 LAGP 接触后会迅速发生反应, Li 会快速和电解质发生反应并扩散至电解质内部, 造成电解质表面快速分解, 致使固态电解质表面无完整的 Li 膜覆盖, 如图 3(a) 所示.

在众多的实验中, 科研工作者们也发现了一些反应后的界面结构是有利于全固态电池性能的体系. 例如在 Li/LiZr₂(PO₄)₃ (LZPO) 体系中, Li 等^[16] 发现金属锂负极可以和 LZPO 反应生成含有 Li₃P 和 Li₈Zr₂O₆ 的具有良好的锂离子电导的钝化层 (如图 3(b) 所示), 物理结构上能同时浸润金属锂负极和固态电解质, 使固态电池具有良好的循环性能和长寿命. 在 Li/LLZO 体系中, Ma 等^[17] 发现在 Li 和 LLZO 接触的瞬间锂离子会进入 LLZO 表面, 并将立方 LLZO 还原为四方的 LLZO, 形成厚度仅为 6 nm 左右的中间相, 如图 3(c) 所示. 通过微观结构表征发现该中间相是锂离子的导体, 电子的绝缘体, 可以作为固体电解质膜抑制进一步的界面反应发生.

综上所述, 在化学接触的情况下生成物天然可以和电极电解质贴合, 到达物理结构上充分接触的效果. 化学上我们期望生成物是优质的固体电解质膜, 能有效地通过锂离子且隔绝电子, 避免出现不受控制的化学反应.

2.3 对电极、电解质进行表面改性处理

从上面两小节我们知道固-固界面无论是物理接触还是化学接触都可能存在严重的问题, 对全固态电池的容量、功率密度、循环性都产生极大的副作用, 其中原位生成界面的方法只对特定的材料体系起作用, 没有广泛的普适性, 这就使得大量优秀的已被充分研究的电极材料不能在全固态电池领域充分发挥其能力, 因此对表面进行改性处理意义重大. 虽然前两小节中所述的物理接触中的热处理和化学接触中的原位固态电解质膜的形成在一定意义上也属于界面改性, 但是除了上述原位形成新界面的处理方式之外, 本小节主要讨论具有广谱性的方法, 即在形成固-固界面前对电极或电解质材料进行改性. 根据电极和电解质的不同, 表面改性处理也主要分为针对电极和电解质之间的物理接触和化学接触而进行表面改性处理. 针对物理接触, 主要思路是改善材料和电池制备工艺, 提高界面接触面积. 针对化学接触, 电极侧的表面处理主要针对正极材料, 阻隔电极与电解质之间的负反应发生. 电解质侧的表面改性处理主要针对金属锂负极与电解质的反应和抑制锂枝晶的生长. 下面分别进行举例说明.

为了改善固-固界面物理接触情况, Chen 等^[18] 提出了阴极支撑固态电解质膜的工艺方案. 他们直

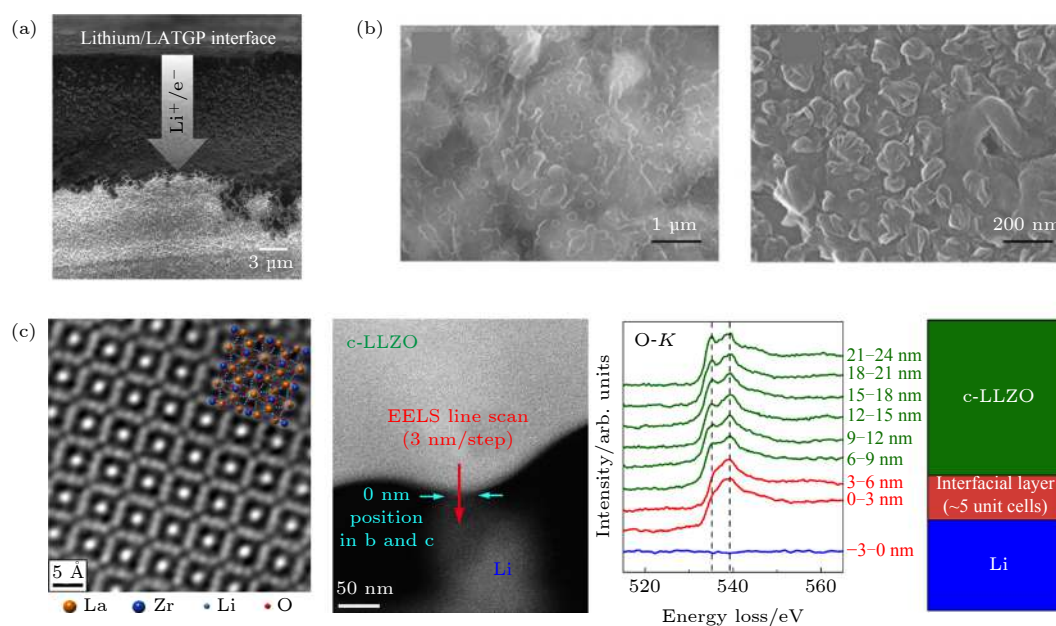


图 3 化学接触界面的结构和物质运输 (a) Li/LAGP 界面发生反应^[15]; (b) Li/LZPO 界面反应^[16]; (c) Li/LLZO 界面反应^[17]

Fig. 3. Structure and mater transport of the chemical contact interface: (a) Reaction at the Li/LAGP interface^[15]; (b) Li/LZPO interface reaction^[16]; (c) Li/LLZO interface reaction^[17].

接将固态电解质浇筑在正极材料上, 得到了优异的固-固界面 (如图 4(a) 所示), 极大地提升了固态电池的性能. Shiraki 等^[19] 发现电极表面平整度和结晶性越好, 形成的固-固界面的电阻越低, 因此得到拥有原子尺度平整有序的正极材料可以有效地提高固-固界面的物理接触情况, 如图 4(b) 所示.

在化学接触的情况下, 我们提到 Li/LAGP 界面会有明显的负反应发生, Liu 等^[20] 利用原子层沉积 (atomic layer deposition, ALD) 方法对 LAGP 固态电解质表面进行 Al_2O_3 包覆, 有效地抑制了 LATP 中金属锂的扩散和四价 Ti 的还原 (如图 5(a) 所示), 实现了良好稳定的全固态电池循环. 同样在固态电解质侧, Shi 等^[21] 通过原位固态反应在 $\text{Li}_2\text{B}_2\text{H}_2$ 固态电解质材料上直接生成了致密的 LiF 纳米颗

粒 (如图 5(b) 所示), 此结构具有优良的锂离子电导和较低电子电导, 同时可以抑制锂枝晶的生长. 正极材料方面, Zhang 等^[22] 通过对 NCM523 进行表面包覆处理, 发现以 $\text{Li}_3\text{B}_{11}\text{O}_{18}$ (LBO) 作为 NCM523/ Li_3PS_4 (LPS) 体系中的包覆材料具有优异的性能, 通过微观结构分析确认了包覆界面的化学稳定性, 如图 5(c) 所示.

金属锂作为负极材料是实现高能量密度的不二选择. 全固态电池的概念从开始出现就被认为能够有效地解决锂枝晶的问题, 但是随着研究的深入, 人们发现在全固态电池中锂枝晶的问题同样会存在. 全固态电池中锂枝晶生长受到电流密度和应力等因素的影响. Zhang 等^[23] 发现锂枝晶的屈服应力可达 130 MPa, 因此在全固态电池金属锂负

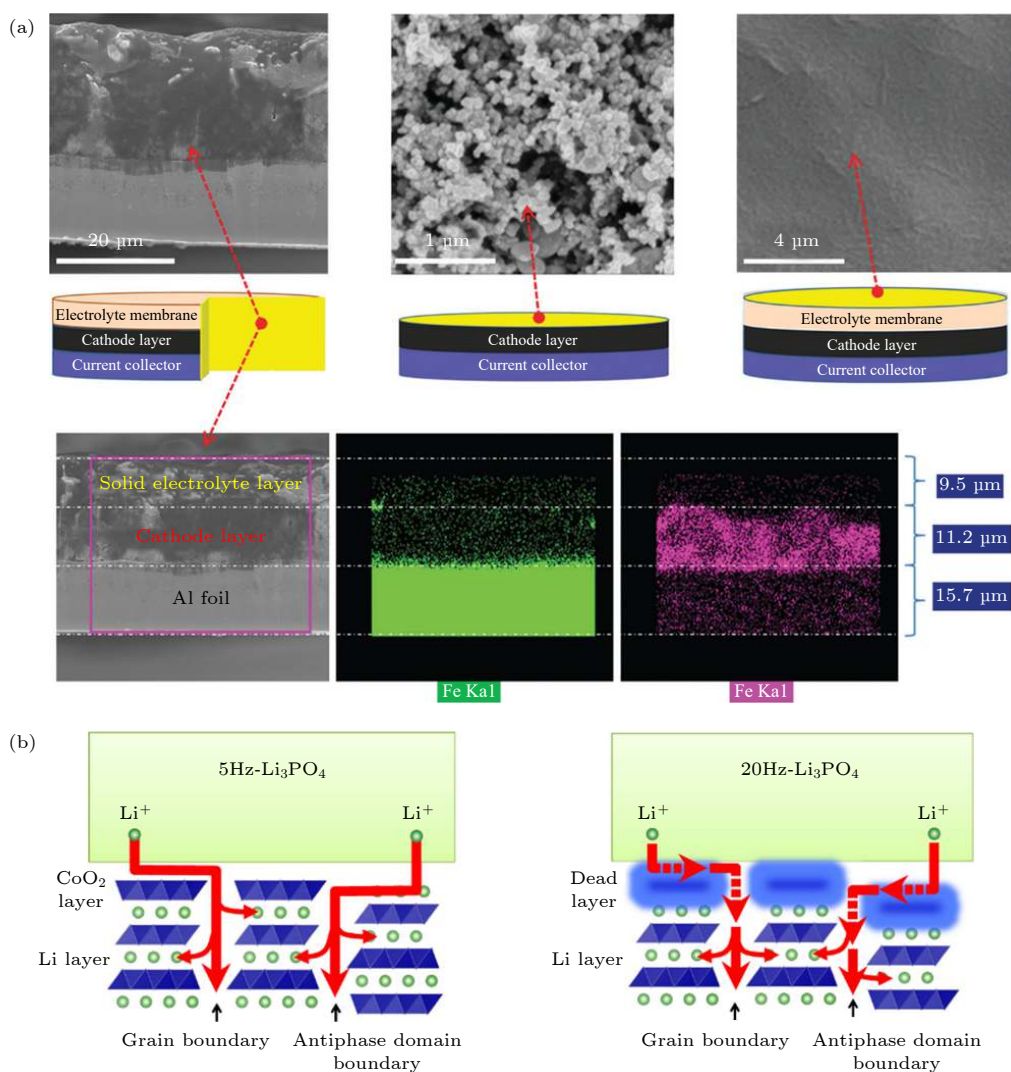


图 4 改善固-固界面物理接触 (a) 阴极支撑的固态电解质方案^[18]; (b) 电极表面原子尺度结构调控全固态电池的界面^[19]

Fig. 4. Improvement of the physical contact of the solid-solid interface: (a) A cathode-supported solid electrolyte membrane framework^[18]; (b) the surface structure of the electrode controlled by the interface of the all-solid-state battery^[19].

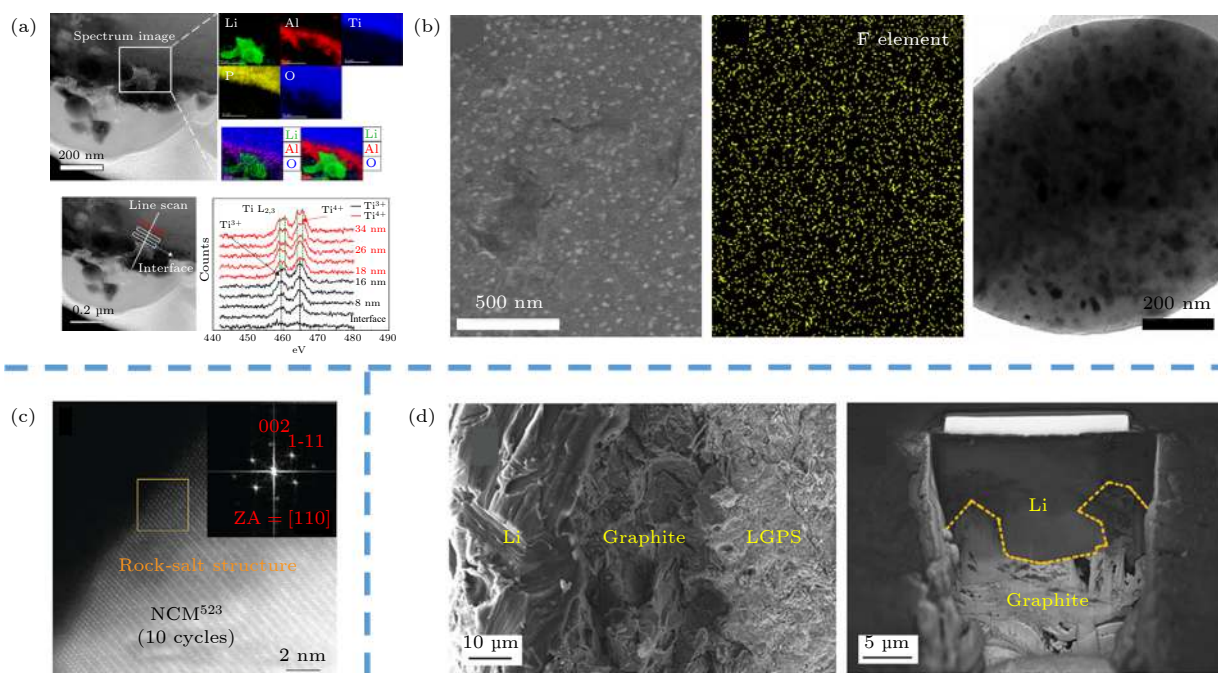


图 5 电极和电解质的表面改性处理 (a) LAGP 固态电解质的表面包覆处理^[20]; (b) LBH 固态电解质的原位 LiF 表面修饰^[21]; (c) NCM523 正极的表面包覆处理^[22]; (d) 金属锂负极的表面处理^[24].

Fig. 5. Surface modification treatment of electrode and electrolyte: (a) Surface treatment of LAGP solid electrolyte^[20]; (b) LBH solid electrolyte with in-situ LiF surface modification^[21]; (c) NCM523 positive electrode surface coating treatment^[22]; (d) Surface treatment of lithium metal anode^[24].

极-固态电解质界面处抑制锂枝晶的生长是十分重要的. 通过对金属锂负极进行改性, 我们可以直面这一问题. Su 等^[24]通过将金属锂与石墨进行组合 (如图 5(d) 所示), 在全固态金属锂电池中实现了无锂枝晶生长的高性能循环.

表面处理改善全固态电池中固-固界面的性质是重要的研究方向, 往往需要多角度考虑问题, 多种方法同时应用. 要求物理上在界面处形成浸润的接触, 同时抑制锂枝晶的生长. 化学上建立优质的界面膜结构, 疏导离子和电子的运输.

3 总结与讨论

固-固界面在全固态电池的研究中是显而易见且众所周知的重点所在, 近年来已有大量的研究工作致力于此. 本综述从本质的构-效关系角度出发, 力求提纲挈领地对固-固界面进行分类讨论, 总结近年来优秀的科研工作并讨论未来的研究思路. 从结构和物质运输的角度出发, 其中结构包括界面处的接触结构和界面两侧的结构, 结构分为宏观和微观两部分, 宏观和微观尺度的接触一定要充分, 两侧的结构在工作过程中要保持稳定存在. 物质运输

即为锂离子和电子的运输, 锂离子电池要求电子通过外电路循环, 而锂离子在电池内穿梭. 如果内部电子不绝缘, 则会发生化学反应和短路. 如果锂离子电导低则直接限制了电池的性能.

现阶段大多数电极和电解质材料自身都可以很好地满足物质运输的基本要求, 因此本文从物质间相互接触的基本情况出发分为物理接触、化学接触和界面改性三个层次, 总结讨论了不同情况下界面的结构和物质运输情况, 以及相应的解决办法.

- 1) 固-固界面的物理接触在微观和宏观尺度上一定要充分, 对循环过程中由于离子脱嵌造成的应力和形变要有一定的容忍度. 否则会直接影响电极电解质结构, 改变物质运输通道, 使电池性能严重下降.
- 2) 针对固-固界面的化学接触, 则应该设计和利用反应产物, 要求产物能够充分浸润电极和电解质. 同时物质运输要求产物是良好的固体电解质膜.
- 3) 对材料进行改性处理的方法有很多, 本质上仍然是要遵循固-固界面物理接触和化学接触的条件, 满足结构演化和物质运输的要求.

文章开始我们提到功能材料功能性起源于局域对称性, 例如动力学上用迁移势垒所描述的物质运输, 能带角度阐明的电子结构的改变、在电场温

度场下缺陷的形成转化与化学势作用下元素的迁移富集等, 这些现象本质上都与微观结构的变化导致的局域对称性破缺密切相关. 通过对固-固界面不同情况的讨论我们知道, 电池材料体系的复杂性导致难以像描述模型体系一样简洁直接, 因此目前所做的大多是从工程的角度改进全固态电池的性能. 如何将微观的结构本质与宏观的复杂体系建立联系, 从科学问题的本质出发建立直观的理解是我们继续努力的方向. 在未来的研究中需要充分总结利用不同材料的特性从构-效关系出发理解和设计出更好的全固态电池.

参考文献

- [1] Hu Y S 2016 *Nat. Energy* **1** 16042
- [2] Ma C, Chen K, Liang C, Nan C W, Ishikawa R, More K, Chi M 2014 *Energy Environ. Sci.* **7** 1638
- [3] Xiao D, Gu L 2020 *Nano Sel.* **1**
- [4] Liu X Z, Tang Z X, Li Q H, Zhang Q H, Yu X Q, Gu L 2020 *Cell Rep. Phys. Sci.* **1** 100066
- [5] Nie K, Hong Y, Qiu J, Li Q, Yu X, Li H, Chen L 2018 *Front. Chem.* **6** 1
- [6] Xu L, Tang S, Cheng Y, Wang K, Liang J, Liu C, Cao Y C, Wei F, Mai L 2018 *Joule* **2** 1991
- [7] Xiao Y, Wang Y, Bo S H, Kim J C, Miara L J, Ceder G 2020 *Nat. Rev. Mater.* **5** 105
- [8] Banerjee A, Wang X, Fang C, Wu E A, Meng Y S 2020 *Chem. Rev. acs.chemrev.0 c00101*
- [9] Gong Y, Zhang J, Jiang L, Shi J A, Zhang Q, Yang Z, Zou D, Wang J, Yu X, Xiao R, Hu Y S, Gu L, Li H, Chen L 2017 *J. Am. Chem. Soc.* **139** 4274
- [10] Gong Y, Chen Y, Zhang Q, Meng F, Shi J A, Liu X, Liu X, Zhang J, Wang H, Wang J, Yu Q, Zhang Z, Xu Q, Xiao R, Hu Y S, Gu L, Li H, Huang X, Chen L 2018 *Nat. Commun.* **9** 3341
- [11] Ohta S, Kobayashi T, Seki J, Asaoka T 2012 *J. Power Sources* **202** 332
- [12] Vardar G, Bowman W J, Lu Q, Wang J, Chater R J, Aguadero A, Seibert R, Terry J, Hunt A, Waluyo I, Fong D D, Jarry A, Crumlin E J, Hellstrom S L, Chiang Y M, Yildiz B 2018 *Chem. Mater.* **30** 6259
- [13] Li X, Ren Z, Norouzi Banis M, Deng S, Zhao Y, Sun Q, Wang C, Yang X, Li W, Liang J, Li X, Sun Y, Adair K, Li R, Hu Y, Sham T K, Huang H, Zhang L, Lu S, Luo J, Sun X 2019 *ACS Energy Lett.* **4** 2480
- [14] Qiu J, Liu X, Chen R, Li Q, Wang Y, Chen P, Gan L, Lee S J, Nordlund D, Liu Y, Yu X, Bai X, Li H, Chen L 2020 *Adv. Funct. Mater.* **30** 1909392
- [15] Hartmann P, Leichtweiss T, Busche M R, Schneider M, Reich M, Sann J, Adelhelm P, Janek J 2013 *J. Phys. Chem. C* **117** 21064
- [16] Li Y, Zhou W, Chen X, Lü X, Cui Z, Xin S, Xue L, Jia Q, Goodenough J B 2016 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **113** 13313
- [17] Ma C, Cheng Y, Yin K, Luo J, Sharafi A, Sakamoto J, Li J, More K L, Dudney N J, Chi M 2016 *Nano Lett.* **16** 7030
- [18] Chen X, He W, Ding L X, Wang S, Wang H 2019 *Energy Environ. Sci.* **12** 938
- [19] Shiraki S, Shirasawa T, Suzuki T, Kawasoko H, Shimizu R, Hitosugi T 2018 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **10** 41732
- [20] Liu Y, Sun Q, Zhao Y, Wang B, Kaghazchi P, Adair K R, Li R, Zhang C, Liu J, Kuo L Y, Hu Y, Sham T K, Zhang L, Yang R, Lu S, Song X, Sun X 2018 *Appl. Mater. Interfaces* **10** 31240
- [21] Shi X, Pang Y, Wang B, Sun H, Wang X, Li Y, Yang J, Li H W, Zheng S 2020 *Mater. Today Nano* **10** 1
- [22] Zhang Y, Tian Y, Xiao Y, Miara L J, Aihara Y, Tsujimura T, Shi T, Scott M C, Ceder G 2020 *Adv. Energy Mater.* **10** 1903778
- [23] Zhang L, Yang T, Du C, Liu Q, Tang Y, Zhao J, Wang B, Chen T, Sun Y, Jia P, Li H, Geng L, Chen J, Ye H, Wang Z, Li Y, Sun H, Li X, Dai Q, Tang Y, Peng Q, Shen T, Zhang S, Zhu T, Huang J 2020 *Nat. Nanotechnol.* **15** 94
- [24] Su Y, Ye L, Fitzhugh W, Wang Y, Gil-González E, Kim I, Li X 2020 *Energy Environ. Sci.* **13** 908

SPECIAL TOPIC—Fundamental physics problems in all solid state batteries

Structural evolution and matter transportation of the interface in all-solid-state battery*

Gong Yue¹⁾ Gu Lin^{1)2)3)†}

1) (*Laboratory of Advanced Materials & Electron Microscopy, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

(Received 21 July 2020; revised manuscript received 24 October 2020)

Abstract

The essence of the scientific problem in all solid-state batteries lies in the properties of the introduced solid electrolyte and the existence of a new solid-solid interface. Starting from the structure-property relationship, the structural evolution of the solid-solid interface and the electrolyte itself, and the matter transport process determine the performance of the all-solid-state battery. With the continuous enrichment of solid electrolyte materials, the current problems in all solid-state batteries are mainly concentrated on the solid-solid interface. The composition and structure at the interface limit the performance of all solid-state batteries. According to the different situations of solid-solid interface contact, this article summarizes and discusses the structure and matter transport at the solid-solid interface in all solid-state batteries according to the three levels of solid-solid interface physical contact, chemical contact and surface modification. Finally, the relationship between local symmetry and material properties under the macroscopic complex system is discussed from the perspective of the functional origin of functional materials.

Keywords: all-solid-state battery, interface structure, matter transportation, electron microscopy

PACS: 68.37.-d, 68.37.Lp, 82.47.Aa

DOI: [10.7498/aps.69.20201160](https://doi.org/10.7498/aps.69.20201160)

* Project supported by the Key Research Program of Frontier Sciences, Chinese Academy of Sciences (Grant No. QYZDB-SSW-JSC035), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51672307, 51421002), and the China National Postdoctoral Program for Innovative Talents.

† Corresponding author. E-mail: l.gu@iphy.ac.cn