

技术进展

面向实用化全固态锂离子电池的
界面问题及调控策略刘爱芳¹, 赵世康², 何 敏¹, 李宝毅¹, 白雪丽¹, 王 峰¹, 侯 凯^{2*}

(1. 太原工业学院, 山西 太原 030008; 2. 太原理工大学矿业工程学院, 山西 太原 030024)

摘要:本文系统综述了固态电池中关键界面问题的基本原理, 包括固-固物理接触不良、空间电荷层效应以及电化学相容性差等, 涵盖不同正极材料体系、电解质本身以及锂金属负极所面临的电解质分解、界面兼容性、稳定性及锂枝晶等挑战。总结了通过电解质材料掺杂改性、界面涂层技术以及增加界面润湿性等手段构建兼容的电解质/电极界面。最后, 从基础研究和工程应用 2 个维度, 展望了实现高能量密度、高安全性、长寿命全固态电池产业化发展路径。

关键词: 固态电解质; 界面工程; 固态电池; 循环稳定性

中图分类号: O647.11

文献标志码: A

文章编号: 0253-4320(2026)07-0018-06

DOI: 10.16606/j.cnki.issn0253-4320.2026.07.004

Interface issues and regulation strategies for practical all-solid-state
lithium-ion batteriesLIU Ai-fang¹, ZHAO Shi-kang², HE Min¹, LI Bao-yi¹, BAI Xue-li¹, WANG Feng¹, HOU Kai^{2*}

(1. Taiyuan Institute of Technology, Taiyuan 030008, China;

2. College of Mining Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

Abstract: This paper systematically reviews the fundamental principles of key interface issues in solid-state batteries, including poor solid-solid physical contact, space charge layer effects, and poor electrochemical compatibility. It also covers challenges related to different cathode material systems, the electrolyte itself, and lithium metal anodes, such as electrolyte decomposition, interfacial compatibility, cycling stability and lithium dendrite formation. Based on this basis, strategies for constructing compatible electrolyte/electrode interfaces are summarized, including electrolyte material doping modification, interface coating technology, and enhancing interfacial wettability. Finally, from the perspectives of basic research and engineering applications, it prospects the development path for the industrialization of high-energy-density, high-safety, and long-life all-solid-state batteries.

Key words: solid electrolyte; interface engineering; solid-state battery; cycling stability

随着清洁能源以及大规模储能领域的快速发展, 高能量密度、长循环寿命和高安全性的储能系统已成为当下研究热点。由于传统液态锂离子电池存在易燃易爆风险, 因此, 用热稳定性更高的固态电解质替代传统的液态电解质, 是一种极具前景的解决方案^[1]。固态电解质是固态电池的核心组件, 其性能决定了电池的整体表现。固态电解质主要包括无机固态电解质和复合固态电解质等。其中, 部分体系电导率已接近主流液态电解质, 例如 $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ 、 $\text{Li}_2\text{S}-\text{P}_2\text{S}_5$ 等固态电解质的离子电导率已达 1.2×10^{-2} 、 1.7×10^{-2} $\text{S}/\text{cm}^{[2-3]}$ 。然而, 与液态电解质不同, 固态电解质不可避免地会与正负电极接触从而形成固-固界面, 由于接触方式、化学稳定性等问题

存在会导致界面接触失效, 这严重限制了固态电池的发展。

电池总内阻的大部分比例为固态电解质的界面阻抗, 不稳定的固-固接触会产生界面空隙, 还涉及界面化学反应、空间电荷层形成等因素, 最终会导致较大的界面阻抗^[4]。在锂金属负极很容易形成锂枝晶, 从而影响电池的循环寿命和安全性^[5]。在高压正极体系中, 固态电解质的电化学分解以及界面副反应也会导致界面阻抗快速增长和容量衰减^[6-7]。为了防止上述问题出现, 研究人员提出了掺杂改性、界面涂层、合金化负极和原位聚合等多种调控策略改善固态电池的界面性能, 并且取得了一定成效。尽管固态电解质界面工程的研究已取得相

收稿日期: 2026-02-24; 修回日期: 2026-05-03

基金项目: 国家自然科学基金项目 (52474138)

作者简介: 刘爱芳 (1981-), 女, 博士, 讲师, 研究方向为固态电解质隔膜, liuaifang@tit.edu.cn; 侯凯 (1990-), 男, 博士, 副研究员, 研究方向为黏土矿物材料, 通讯联系人, houkai@tyut.edu.cn。

应成果,但相关研究体系仍然较为分散,缺乏系统总结。因此,对固态电解质的界面工程进行系统综述是十分必要的。

1 固态电解质界面问题

1.1 固-固界面接触不充分

固态电解质和电极材料均为刚性材料,由于受材料表面微观颗粒、加工方式、充放电等因素影响,固态电解质和电极界面之间物理接触减小,这会导致大量空隙与缺陷产生,从而阻断离子传输路径,增大离子迁移的界面阻力。例如, $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ (LLZO) 固态电解质具有较高的机械强度与脆性,而且 LLZO 暴露在空气中形成 Li_2CO_3 污染层,导致与锂金属负极之间形成点接触,接触面积减小,因此导致界面接触电阻升高至 $1\ 235\ \Omega\cdot\text{cm}^2$,远大于液态电解质界面电阻。Nasir 等^[8]向 LLZO 颗粒表面添加少量碳酸盐和醚类液态电解质,以增加润湿性并降低界面电阻。

1.2 空间电荷层形成

由于固态电解质与电极界面之间存在化学势差,电子会从能级较高的一侧向较低的一侧迁移,直至达到平衡,由于电子迁移会导致电荷的重新分布,因此界面两侧会形成电荷积累产生空间电荷层。Onoue 等^[9]研究了层状正极材料(LiCoO_2)与石榴石型固态电解质($\text{Li}_{6.4}\text{La}_3\text{Zr}_{1.4}\text{Ta}_{0.6}\text{O}_{12}$)在共烧过程中的界面高电阻层形成过程。在温度低于 200°C 时,锂的化学电势差促使锂从石榴石相向 Li_xCoO_2 迁移,再结合锂缺陷,石榴石相的分解导致贫锂层形成,而该贫锂层会阻碍锂离子的迁移,这是高界面电阻的主要成因^[10]。空间电荷层的厚度和阻抗大小取决于固态电解质与电极材料间的界面电势差、离子迁移率和电解质类型等,且硫化物固态电解质的空间电荷层厚度通常大于氧化物固态电解质^[11]。

1.3 化学/电化学相容性差

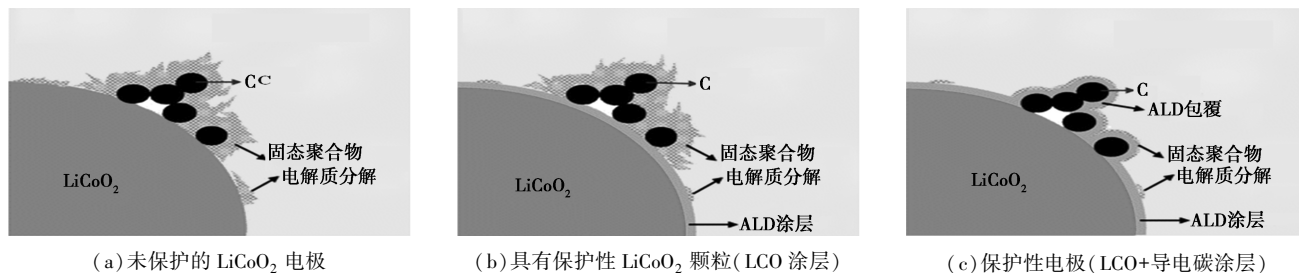
化学相容性差是由于固态电解质与电极材料的化学热力学不稳定性,两者接触后会发生化学反应生成界面副产物。而这些副产物一般为离子绝缘

体,使界面电阻增加。例如,硫化物固态电解质(如 $78\text{Li}_2\text{S}-22\text{P}_2\text{S}_5$)具有较高的还原性,易与高电压正极材料(如 LiCoO_2 、NCM)发生氧化还原反应,生成 Li_3P 、 Li_2S 等绝缘性副产物^[12]。同时,硫化物固态电解质对水和空气较为敏感,易水解生成 H_2S 等毒性气体,这会与电极材料表面发生反应,从而加剧界面副反应。而氧化物固态电解质 LLZO 中锂离子在表面富集,很容易与氧反应生成富集在材料表面的 Li_2O ,而 Li_2O 又容易与空气中的水分反应生成 Li_2CO_3 ,从而导致界面电阻增大,影响固态电池界面处的离子传输效率^[13]。此外,与锂金属负极接触时,仍会发生少量化学反应生成 LaLiO_2 、 ZrO_2 等低离子导电性产物,导致界面电阻随循环次数的增加而上升。

电化学相容性差是指电池在充放电的电化学窗口内,固态电解质或电极材料发生剧烈的界面分解反应,从而产生不稳定的界面产物。例如,有机固态电解质聚环氧乙烷(PEO)的电化学窗口较窄,通常小于 4 V ,当匹配高电压电极材料时,PEO 会被氧化分解,从而破坏界面稳定性。据 Nie 等^[14]研究表明,纯 PEO 电解质在 4.5 V 会分解并释放气体,增加了界面副反应的发生,而以 LiCoO_2 作为阴极时,其脱锂后的 $\text{Li}_{1-x}\text{CoO}_2$ 具有强烈的氧化性,分解电压会降至 4.2 V 。另外,锂金属负极在充放电过程中会发生电化学沉积,导致锂在截面处形核生长,这可能引发局部电流密度分布不均匀,进一步加剧电解质分解。因此,为了避免上述问题产生,应通过相应的界面工程调控策略来抑制界面副反应发生,以稳定界面并延长固态电池的使用寿命,如图 1 通过涂层保护 LiCoO_2 电极和导电碳颗粒表面进行原子层沉积(ALD)涂层后,实现了长期循环稳定的高压固态聚合物电解质基锂离子电池^[15]。

1.4 锂枝晶蔓延

锂枝晶穿透是制约锂金属固态电池发展的关键问题,容易造成电池内部短路,引发安全隐患。锂枝晶的形成与界面局部电流密度不均匀、固态电解质机械强度不足、表面裂纹和空洞、压力、应力和温度



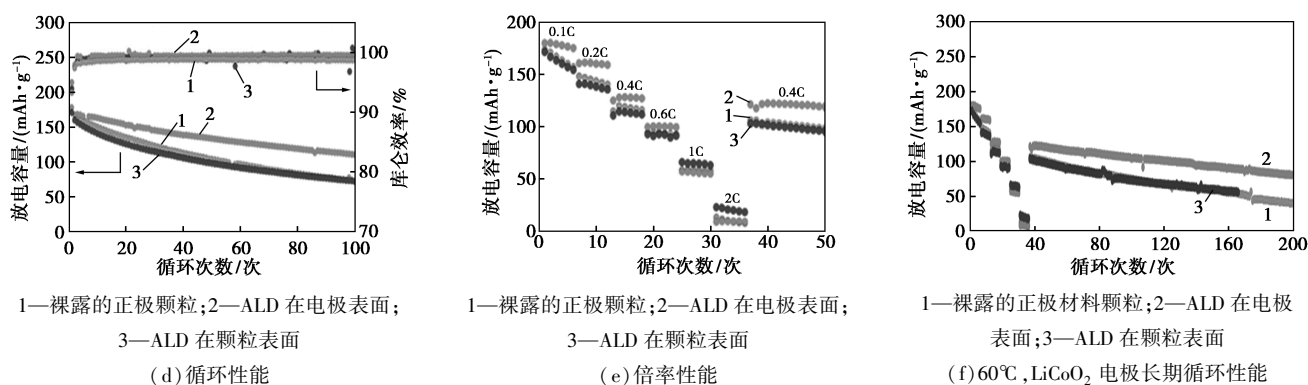
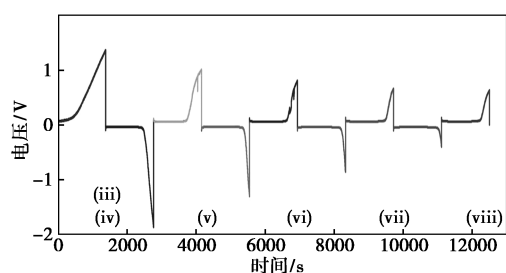
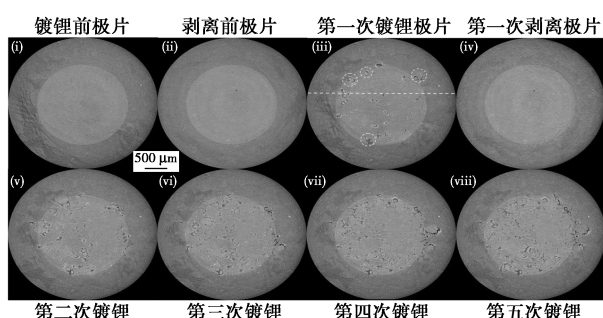


图 1 原子层沉积涂层工作机制示意图

等因素有关^[16]。在电池充放电过程中,固态电解质与锂金属界面的物理接触不充分,锂离子容易在界面空隙或裂纹处发生不均匀沉积,从而形成锂枝晶的生长位点。同时,空间电荷层的形成会导致界面锂离子浓度以及电场分布不均匀,这会促进锂枝晶的生长,并且随着循环次数的增加,锂枝晶的生长速度也会加快。此外,固态电解质的机械强度不足也是锂枝晶穿透的主要原因之一。近期研究表明,即便在剪切模量高达 50 GPa 的氧化物固态电解质中,锂枝晶穿透现象仍然会发生^[17]。在固态电解质中,锂枝晶在填充缺陷的过程会产生压力,这种压力会促进裂纹产生,加速锂枝晶产生。如图 2 所示缺陷的存在会促进裂纹的产生^[18]。同时,应力也是一种重要的锂枝晶影响因素,它会改变固态电解质的微观结构,尤其会促使锂金属和固态电解质之间的应力不均匀性,从而促进锂枝晶的生长。



(a) 对称锂/Li₆PS₅Cl/锂电池在 7 MPa 压力和 1.25 mA/cm² 电流密度下循环时的电压-时间曲线,容量为 0.5 mAh/cm²



(b) 不同循环阶段裂纹的变化

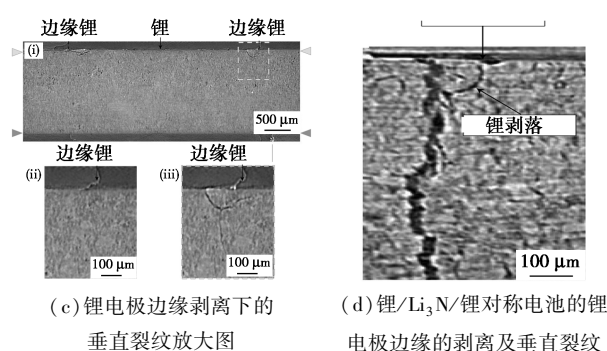


图 2 锂/Li₆PS₅Cl/锂电池采用 X 射线计算机断层扫描(XCT)显示锂镀层诱导的剥离现象

2 固态电解质界面工程调控策略

2.1 固态电解质表面修饰

2.1.1 电解质掺杂表面改性

掺杂改性是通过在固态电解质的晶格中引入异价离子,调控电解质的晶体结构、缺陷浓度和离子电导率,同时改善电解质表面的化学特性,降低与电极的界面反应活性并提高锂离子的扩散速率。通过掺杂改性可以形成稳定的界面保护层,从而减少电解质分解。此外,通过元素掺杂能够有效提升固态电解质的离子电导率,稳定电解质与电极界面。掺杂改性主要适用于无机固态电解质,根据掺杂位点的不同可分为阳离子掺杂和阴离子掺杂。

阳离子掺杂是氧化物固态电解质 LLZO 的常用改性方法,通过引入 Al³⁺、Ga³⁺、Nb⁵⁺ 等异价阳离子,取代 LLZO 晶格中的 Li⁺、La³⁺、Zr⁴⁺ 等位点,增加锂离子空位和形成稳定立方相,能够优化锂离子迁移通道和降低界面阻抗,从而提升锂离子迁移效率。Gaukås 等^[19]通过水相合成法制备了具有立方晶体结构的纯相 LLZO,研究了不同 Al 掺杂量($x=0.2\sim 0.4$)的 Li_{7-3x}Al_xLa₃Zr₂O₁₂ 电化学性能。如图 3 所示,LLZO 中的最佳 Al 含量为 $x=0.2$,这是稳定立方

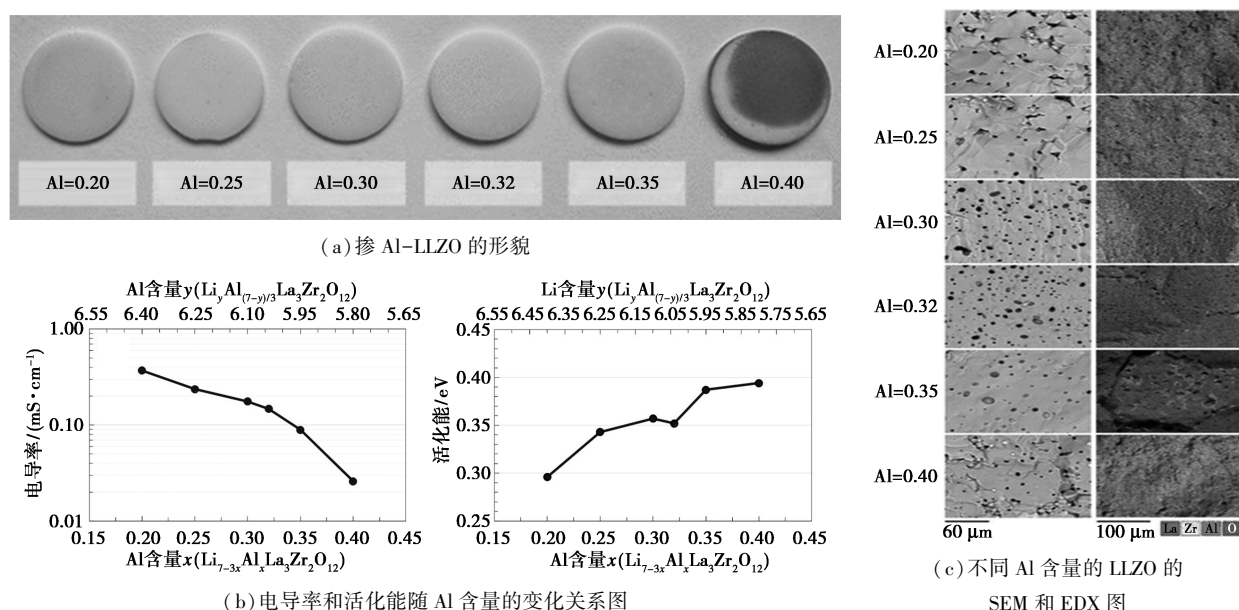


图3 Al 掺杂量变化对 LLZO 性能的影响

结构所需的最低含量,而且在室温下的锂离子电导率为 $3.7 \times 10^{-4} \text{ S/cm}$ 。Kim 等^[20]通过溶胶-凝胶法实现 3 阳离子协同掺杂,获得纯立方相、无二次相、晶粒均匀的 LLZO 电解质。在 $\text{Rb}:\text{Ga}:\text{Nb}$ 摩尔比为 0.1:0.2:0.6 时性能最佳,室温下实现了高达 $2.22 \times 10^{-4} \text{ S/cm}$ 的锂离子电导率,活化能低至 0.23 eV。宋健等^[21]通过固相法以 LiOH 为助烧剂制备了 Ta 掺杂 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ (Ta-LLZO) 电解质,在 1200℃ 烧结可获得致密的立方相结构,离子电导率可达 $6.23 \times 10^{-4} \text{ S/cm}$ 。Saud 等^[22]通过在固态电解质 $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 中掺入 ZrCl_4 显著提高了电化学性能,而且是独特地将双掺杂剂(Zr^{4+} 和 Cl^-)引入 $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ 基质中,显著增强了结构稳定性和离子导电性,临界电流密度从 0.55 mA/cm^2 升高至 1.7 mA/cm^2 ,界面处锂沉积更加均匀,离子电导率可达 $3 \times 10^{-3} \text{ S/cm}$ 。

阴离子掺杂主要通过引入 F^- 、 Cl^- 等卤素离子,通过调控固态电解质的晶格参数与化学键强度,以改善界面相容性。Ma 等^[23]通过在 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ 中掺杂 F^- 得到理想且致密的 $\text{Li}_{6.8}\text{Al}_{0.2}\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{11.8}\text{F}_{0.2}$ 材料,其中 F^- 可取代晶格中的 O^{2-} 。结果表明,材料相对密度可达 95.4%, $\text{Li}-\text{O}$ 键强度增强,结构稳定性增加。并且掺杂电解质的电化学窗口变宽,证明与高电压正极材料的相容性显著提升。

2.1.2 界面涂层与表面修饰

界面涂层与表面修饰是目前应用最为广泛的界面工程策略之一。根据涂层材料的类型可分为无机涂层、有机涂层和有机-无机复合涂层。

无机涂层主要包括氧化物、硫化物以及卤化物等,这些涂层具有高离子电导率与化学稳定性。无机涂层的制备方法主要包括溶胶-凝胶法、原子层沉积(ALD)、磁控溅射等,其中 ALD 法可制备纳米级均匀涂层,修饰效果显著,但成本较高,难以规模化应用。Hood 等^[24]通过 ALD 法制备 Al_2O_3 无机涂层,修饰 $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$ 硫化物固态电解质粉末,涂层可以直接生长在 $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$ 颗粒上。结果表明,由涂层粉末制成的颗粒展现出的离子导电性比未涂层材料高出 2 倍以上,并且电池的室温循环寿命得到了大幅提升。

有机涂层主要包括聚合物、离子液体和有机膦酸酯等,具有良好的柔性和界面润湿性,可以改善固态电解质与电极间的物理接触。Liu 等^[25]通过在硫化物固态电解质 $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$ 颗粒表面引入纯有机分子涂层 1-十一烷硫醇,能牢固地附着在 $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$ 表面,并作为吸附润滑层发挥作用。但部分有机材料的离子电导率较低,过量涂覆则会导致界面阻抗升高。

有机-无机复合涂层具备无机涂层的高离子电导率与有机涂层的高柔性特点,是近年来的研究热点。Wang 等^[26]在固态电解质 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ti}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ (LATP)表面构建一种 PEO 基聚合物涂层,并在 PEO 改性界面层中添加无机氧化物 $\text{Li}_{1.05}\text{Fe}_{0.05}\text{Zr}_{1.95}(\text{PO}_4)_3$ (LZP)作为填充剂组成坚固的柔性中间层。结果表明,改性后的 LATP 临界电流密度从 0.34 mA/cm^2 增加到 1.58 mA/cm^2 ,此外,在 0.20 mA/cm^2 电流密

度下保持超过 5 000 h 的循环稳定性,并且在 0.5 C 电流下进行 250 次循环后无明显容量衰减,表明复合涂层可有效抑制锂枝晶生长。

2.2 负极界面工程策略

目前,锂金属负极常用的修饰策略包括合金化改性、人工固态电解质界面(SEI)膜及构建三维结构等。

合金化改性是通过将锂金属与 Sn、Si、Al、Mg、Bi、Sr 等形成合金,这些合金具有高电位、高锂扩散系数、改善与固体电解质润湿性、改善锂沉积行为、抑制锂枝晶穿透的优点,有助于提高界面的稳定性。He 等^[27]在锂金属负极中引入 Sr 元素,形成富含 Li-Sr/SrO 的双功能亲锂/贫锂层。此外,液态的 Li-Sr 合金能够迅速扩散到 LLZTO 的表面,这证实了添加 Sr 元素能够降低 Li 与掺杂 Ta 的 LLZTO 之间的界面能,从而增加两者之间的界面接触,改善了电解质与电极之间的界面稳定性问题。

人工 SEI 膜的构建是增加固态电解质与电极间界面稳定性的重要方法。主要是通过向锂金属表面预先构建一层人工 SEI 膜,作为物理屏障可以有效抑制锂枝晶生长,降低界面反应活性,同时提升界面稳定性。理想的人工 SEI 膜应具备以下特性:高阳离子导电性和高电阻,厚度稳定具有高机械韧性,能够承受充电引起的体积变化,以及在一定的温度和电压范围内保持稳定。Ye 等^[28]设计并合成了一种富含磺酸盐的聚合物嵌入层状双氢氧化物(LDH@PSS),并通过旋涂在锂表面获得了有机-无机杂化的人工 SEI 膜,可降低界面阻抗。

此外,构建三维结构负极可以有效增加界面面积,也是调控界面问题的一种方法。通过降低单位面积上的局部电流密度,可以有效改善锂沉积行为,从而提升界面稳定性。Ma 等^[29]通过将热处理后的聚丙烯腈纤维与相互连接的金属有机框架(h-PAN@MOF)相结合,构建了一种具有三维连续锂离子传输网络的紧凑复合固态电解质。但这类三维结构设计在实际电池中的工艺复杂性以及可规模化程度仍有待进一步评估。

2.3 原位反应形成界面层

原位聚合是将液态单体、增塑剂等与固态电解质、电极材料混合后注入电池内部,等充分浸润电极材料并在电池组装后通过热引发或光引发聚合固化,从而形成固态聚合物电解质界面层,改善界面接触。Mu 等^[30]在固态电解质制备过程中以 DOL/DME 作为单体,通过原位固化方法制备出一种

PDOL@ nanoTiO₂ 复合聚合物电解质。结果表明,所制备的 PDOL@ nanoTiO₂ 复合聚合物电解质的锂离子转移数可高达 0.725,在 25℃ 时的离子电导率可达 1.74×10^{-3} S/cm。这不仅解决了传统填料简单物理混合和容易团聚的问题,还提高了离子导电性和界面稳定性。原位聚合固化的优势是在聚合过程中能够形成化学键和共价键,使得界面层与电解质、电极具有较强的结合力。此外,制备工艺简单,能够与现有电池工艺兼容,适合规模化生产。

原位钝化是利用固态电解质或电极材料中的添加剂,在充放电过程中原位生成钝化层,抑制界面副反应和锂枝晶生长。例如,在 PEO 基固态电解质中添加双三氟甲烷磺酰亚胺锂(LiTFSI)与碳酸亚乙烯酯(VC)聚合单体,以氟代碳酸乙烯酯(FEC)为添加剂,通过原位固态化生成 PVC 基聚合物电解质。VC 在过程中原位分解/聚合,在正极表面形成稳定的钝化层富氟有机-无机正极-电解质相(CEI)。该钝化层可抑制 PEO 的氧化分解,使固态电解质的抗氧化能力提升,并且可抑制锂枝晶生长,同时降低界面阻抗,最终实现 LiCoO₂ 准固态电池在室温 4.5 V 电压下的稳定运行。

3 总结与展望

综上所述,尽管目前固态电解质界面工程已取得一定进展,但是在实际应用中仍面临许多挑战,需要进一步深入研究。

(1) 界面接触与力学稳定性方面:从材料本征柔性设计、微结构调控以及界面应力缓释机制等方面出发,构建具有良好润湿性与机械匹配性的界面结构,以减少循环过程中因为体积变化而引发的界面脱黏和裂纹扩展等问题。

(2) 界面化学与电化学稳定性方面:结合人工智能辅助材料设计通过精确的掺杂改性调控、构建超薄高离子导电层以及发展原位钝化策略,则有希望在确保锂离子快速传输的同时,抑制不稳定界面相的生成,从而拓宽固态电池的电化学窗口。

(3) 锂枝晶抑制方面:综合考虑界面缺陷、空间电荷层和电流密度等多因素的共同作用,实现对锂沉积行为的多尺度调控。

(4) 工艺与规模化应用方面:部分界面工程调控策略仍然依赖复杂的制备工艺和成本昂贵的材料,严重限制了其产业化的潜力。推动原位聚合、原位反应调控等与现有电池制造工艺相兼容的技术成熟,是实现固态电池规模化应用的一个重要方向。

参考文献

- [1] 孔德钰,赵子越,郇庆娜.全固态金属锂电池安全性研究进展[J].电源技术,2025,49(12):2471-2484.
- [2] Li Y, Song S, Kim H, *et al.* A lithium superionic conductor for millimeter-thick battery electrode[J]. Science, 2023, 381(6653):50-53.
- [3] Li M, Yang S, Li B. Advances in electrolyte-anode interface engineering of solid-state lithium metal batteries[J]. Interdisciplinary Materials, 2024, 3(6):805-834.
- [4] Fan X, Zhong C, Liu J, *et al.* Opportunities of flexible and portable electrochemical devices for energy storage: Expanding the spotlight onto semi-solid/solid electrolytes[J]. Chemical Reviews, 2022, 122(23):17155-17239.
- [5] Liu W, Liu Z, Li X, *et al.* Electro-thermal state co-estimation of solid-state batteries considering solid electrolyte interface high-frequency impedance[J]. Journal of Power Sources, 2025, 652:237594.
- [6] Zhao J, Wang X, Wei T, *et al.* Current challenges and perspectives of garnet-based solid-state electrolytes[J]. Journal of Energy Storage, 2023, 68:107693.
- [7] Itoh T, Yuan Q, Song C, *et al.* Correlation among crystal and local structure, phase transition, and Li-ion conduction of solid electrolyte $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ [J]. Journal of Solid State Chemistry, 2023, 327:124274.
- [8] Nasir M, Seo J, Jung S I, *et al.* Liquid electrolyte-assisted stabilization of the LLZO/Li interface for stable lithium metal batteries[J]. EES Batteries, 2025, 1(5):1314-1322.
- [9] Onoue K, Nasu A, Matsumoto K, *et al.* Trigger of the highly resistive layer formation at the cathode-electrolyte interface in all-solid-state lithium batteries using a garnet-type lithium-ion conductor[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2023, 15(45):52333-52341.
- [10] Lewis J A, Sandoval S E, Liu Y, *et al.* Accelerated short circuiting in anode-free solid-state batteries driven by local lithium depletion[J]. Advanced Energy Materials, 2023, 13(12):2204186.
- [11] Chen Y, Huang L, Zhou D, *et al.* Elucidating and minimizing the space-charge layer effect between NCM cathode and $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$ for sulfide-based solid-state lithium batteries[J]. Advanced Energy Materials, 2024, 14(30):2304443.
- [12] Wu J, Liu S, Han F, *et al.* Lithium/sulfide all-solid-state batteries using sulfide electrolytes[J]. Advanced Materials, 2021, 33(6):2000751.
- [13] Huang L, Gao J, Bi Z, *et al.* Comparative study of stability against moisture for solid garnet electrolytes with different dopants[J]. Energies, 2022, 15(9):3206.
- [14] Nie K, Wang X, Qiu J, *et al.* Increasing poly(ethylene oxide) stability to 4.5 V by surface coating of the cathode[J]. ACS Energy Letters, 2020, 5(3):826-832.
- [15] Liang J, Sun Y, Zhao Y, *et al.* Engineering the conductive carbon/PEO interface to stabilize solid polymer electrolytes for all-solid-state high voltage LiCoO_2 batteries[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2020, 8(5):2769-2776.
- [16] Yang X, Wang Y, Guo Y, *et al.* Interfacial engineering of suppressing Li dendrite growth in all solid-state li-metal batteries[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2024, 12(25):14848-14865.
- [17] McConohy G, Xu X, Cui T, *et al.* Mechanical regulation of lithium intrusion probability in garnet solid electrolytes[J]. Nature Energy, 2023, 8:241-250.
- [18] Ning Z, Jolly D S, Li G, *et al.* Visualizing plating-induced cracking in lithium-anode solid-electrolyte cells[J]. Nature Materials, 2021, 20(8):1121-1129.
- [19] Gaukäs N H, Sunde T O, Arstad B, *et al.* Effects of different doping strategies on cubic $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ solid-state Li-ion battery electrolytes[J]. ACS Applied Energy Materials, 2024, 7(24):12141-12154.
- [20] Kim M, Kim G, Lee H. Tri-doping of sol-gel synthesized garnet-type oxide solid-state electrolyte[J]. Micromachines, 2021, 12(2):134.
- [21] 宋健,张航,薛丽红. LiOH 对 Ta 掺杂石榴石型 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ 固体电解质的影响[J]. 硅酸盐学报, 2022, 50(3):770-774.
- [22] Saud M B, Faheem M B, Li H, *et al.* Synergy of metal halide doping and a polymeric interface enables improved electrochemical performance of all solid-state Li batteries[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2025, 13(40):34220-34230.
- [23] Ma X, Xu Y. Efficient anion fluoride-doping strategy to enhance the performance in garnet-type solid electrolyte $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2022, 14(2):2939-2948.
- [24] Hood Z D, Mane A U, Sundar A, *et al.* Multifunctional coatings on sulfide-based solid electrolyte powders with enhanced processability, stability, and performance for solid-state batteries[J]. Advanced Materials, 2023, 35(21):2300673.
- [25] Liu M, Lu E, Wang S, *et al.* Densifying solid electrolytes through surface lubrication to mitigate shorting of solid-state batteries[J]. ACS Energy Letters, 2025, 10(3):1389-1396.
- [26] Wang F, Yang B, Huang C, *et al.* Flexible interfacial modification layers towards enhanced performance in LATP-based all-solid-state batteries[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2026. DOI: 10.1039/D5TA06721A.
- [27] He X, Ji X, Zhang B, *et al.* Tuning interface lithiophobicity for lithium metal solid-state batteries[J]. ACS Energy Letters, 2022, 7(1):131-139.
- [28] Ye Z, Zhai S, Liu R, *et al.* Sulfonate-rich polymer intercalated LDH artificial SEI film to enable high-stability Li-ion batteries[J]. Chemical Engineering Journal, 2024, 479:147847.
- [29] Ma Y, Qiu Y, Yang K, *et al.* Competitive Li-ion coordination for constructing a three-dimensional transport network to achieve ultra-high ionic conductivity of a composite solid-state electrolyte[J]. Energy & Environmental Science, 2024, 17(21):8274-8283.
- [30] Mu K, Dong W, Xu W, *et al.* In situ hybrid crosslinking polymerization of nanoparticles for composite polymer electrolytes to achieve highly-stable solid lithium-metal batteries[J]. Advanced Functional Materials, 2024, 34(45):2405969. ■