

水系锌离子电池负极-电解液界面优化及虚拟开发

郑玉杰^{1*}, 吴 过¹, 汪 磊¹, 梅华平¹, 苟倩誌^{2*}, 李 猛^{1*}

- (1. 重庆大学国家储能技术产教融合创新平台, 低品位能源利用技术与系统教育部重点实验室, 重庆大学-新加坡国立大学
可再生能源材料与器件联合实验室, 能源与动力工程学院, 重庆 400044;
2. 教育部低碳建筑国际合作联合实验室, 西安建筑科技大学建筑设备科学与工程学院, 西安 710055)

摘 要: 水系锌离子电池(aqueous zinc-ion batteries)凭借其高安全性、低成本和环境友好等优势, 已成为后锂离子电池时代具有良好发展前景的储能体系。然而, 该类电池在实际应用中仍面临诸多挑战, 如枝晶生长、析氢反应(hydrogen evolution reaction, HER)以及腐蚀等负极界面问题, 严重制约其日历寿命与能量密度。为解决对上述问题, 亟需通过合理的策略对电池界面优化。然而, 当前关于 AZIBs 界面优化的相关综述报道较为缺乏。因此, 本文从 AZIBs 的界面问题及其优化策略出发, 重点综述负极界面调控、电解质优化以及隔膜优化等方面的研究进展。同时, 由于传统实验依赖试错策略, 且难以揭示微观反应机制, 限制高效优化策略的开发, 本文还深入探讨了虚拟开发技术(含密度泛函理论计算、分子动力学模拟和机器学习等方法)在揭示微观反应机制、加速材料筛选与优化界面性能中的重要作用。本文强调的界面优化及虚拟开发研究范式对推动 AZIBs 实用化有着重要意义, 指出多尺度模拟与实验协同解决相关界面问题, 从而提升电池综合性能的研究进展, 为下一代高性能储能器件的理性设计提供重要参考。

关键词: 水系锌离子电池; 界面优化; 虚拟开发; 实验与理论结合

中图分类号: TM911

文献标识码: A

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



二次电池是最具潜力的电化学储能器件之一, 其中锂离子电池因工作电压高、能量密度大、循环寿命长且自放电低, 被广泛应用于便携式电子产品及电动汽车领域^[1]。但潜在安全风险、高昂成本及锂资源匮乏等问题, 仍制约其未来发展^[2]。相较于有机系储能器件, 水系电池采用不可燃电解液, 兼具本征安全性、环境友好及低成本优势。如水系镁离子电池以 Mg^{2+} 为电荷载体, 继承水系电解质优势, 在特定电解液中可实现无枝晶沉积, 且镁理论体积容量高^[3-4], 但镁离子溶剂化层难脱附导致动力学迟缓、库仑效率低, 且缺乏匹配的高电压高容量正极, 制约能量密度与循环寿命^[5]。水系钠离子电池依托钠资源丰富、分布均匀的优势, 在可持续性 & 大规模储能领域潜力突出^[6], 但钠金属负极在水系中无法稳定沉积、析氢剧烈, 需采用嵌钠型负极降低总能量密度, 且钠离子半径大导致正极固相扩散慢, 限制倍率性能^[7]。而水系锌离子电池

(aqueous zinc-ion batteries, AZIBs) 则展现出优异的平衡性与应用潜力。在资源成本方面, 锌的地壳丰度远高于锂^[8], 同时其制造过程通常无需苛刻的无水无氧环境, 使其在原料与制造成本上均具优势。在电化学性能方面, 锌金属负极不仅具有高的理论质量比容量 ($820 \text{ mAh}\cdot\text{g}^{-1}$) 和体积比容量 ($5\ 855 \text{ mAh}\cdot\text{cm}^{-3}$)^[9], 电池还拥有极为可观的使用寿命(可实现超过 2 000 次的稳定循环)^[10]。此外, 水系电解液的高离子电导率(如 $2 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1} \text{ ZnSO}_4$ 的离子电导率可达 $\sim 80 \text{ mS}\cdot\text{cm}^{-1}$, 远高于有机系电解液的 $\sim 10 \text{ mS}\cdot\text{cm}^{-1}$)^[11] 则为电池实现高功率密度^[12](可 $\geq 10\ 000 \text{ W}\cdot\text{kg}^{-1}$) 提供了关键基础。因此, 水系锌离子电池集高安全性、资源丰富性、低制造成本与卓越的电化学性能于一身。这些系统性、互补性的优势, 共同确立了其在未来储能竞争格局中令人瞩目的地位与潜力^[13-14]。

与锂离子电池类似, AZIBs 也是由正极、负极、

收稿日期: 2025-10-07.

基金项目: 国家自然科学基金项目(52173235); 重庆市技术创新与应用发展专项重点项目(CSTB2025TIAD-KPX0020); 重庆市自然科学基金项目(CSTB2025NSCQ-BSX0023), 重庆大学 2024 年本科教育教学改革研究项目教师教学发展专项(2024JF11); 西安建筑科技大学科研启动基金项目(196032407)。

* 通信联系人。E-mail: zhengyujie@cqu.edu.cn; gqz813@xauat.edu.cn; limeng@cqu.edu.cn.

电解液和隔膜组成. 典型的 AZIBs 常选用金属锌为负极, 离子嵌入型材料^[15](如 MnO_2 、 V_2O_5 和普鲁士蓝类似物等)为正极, 并搭配中性或弱酸性水系电解液[如 ZnSO_4 、 $\text{Zn}(\text{CF}_3\text{SO}_3)_2$]^[16]. 充电时, Zn^0 在负极失去电子被氧化为 Zn^{2+} 并溶解进入电解液, 同时电解液中的 Zn^{2+} 向正极迁移并进行储存. 更详细的正极储存机制及充放电过程如图 S1 及补充信息所示.

尽管具有诸多优点, 但 AZIBs 的实际应用仍面临着一系列问题^[17], 例如, 电化学窗口较窄、离子传质缓慢、正极溶解、负极枝晶生长等, 限制了 AZIBs 的日历寿命与能量密度^[18]. 上述问题的根源可以追溯到水分子的高活性与电极-电解液界面的不稳定性^[19]. 电极-电解液界面作为调控电池性能的核心区域, 其直接决定电解液的稳定性、界面膜的形成及离子去溶剂化等关键电化学反应^[20]. 值得注意的是, 与电池正极相比, 负极作为锌沉积/溶解反应发生的主要场所, 其界面性质更为关键. 锌枝晶的不可控生长、副反应的频繁发生以及界面离子传输迟滞等问题, 往往是造成电池性能迅速衰退的直接原因. 因此, 本研究将重点聚焦于锌负极界面, 深入理解其电化学反应并实施有效调控, 为进一步提升 AZIBs 整体性能提供重要参考.

目前改善负极-电解液界面的主要策略有: 1) 负极调控: 三维锌负极结构设计、构建人工界面功能层和电极合金化设计等策略^[21]; 2) 隔膜优化: 设计亲锌性隔膜、离子筛隔膜、两性离子调控隔膜、表面电荷调控隔膜、双功能梯度隔膜等^[22]; 3) 电解液优化: 采用高浓度盐电解液、功能型添加剂或新型溶剂等体系^[23]. 本文将围绕着这 3 个要点系统地综述相关界面优化策略及其具体应用(图 1). 此外, 传统实验方法在界面优化方面虽取得巨大进展, 但繁琐的表征手段受空间和时间尺度限制难以深入揭示微观反应机制, 且往往依赖试错策略, 限制高效优化策略的开发. 为解决这些问题, 虚拟开发技术如传统的第一性原理计算(density functional theory, DFT)、分子动力学模拟(molecular dynamics, MD)和新兴的机器学习(machine learning, ML)为电极/电解液界面的研究提供了极大助力. 虚拟开发技术不仅能深入理解 AZIBs 界面的复杂物理化学过程, 还可实现界面特性的精准调控, 为高性能水系锌离子电池的设计提供科学指导^[24]. 通过多策略界面优化与计算模拟二者协同, 形成了“机理解析—性能预测—实验验证”的闭环研究模式, 推动 AZIBs 从经验探索迈向数据驱动设计^[25].

证”的闭环研究模式, 推动 AZIBs 从经验探索迈向数据驱动设计^[25].

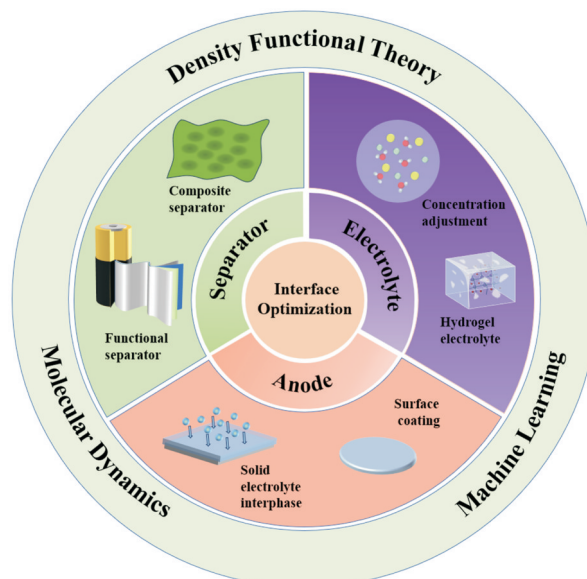


图 1 电极-电解液界面优化策略

Fig. 1 Electrode-electrolyte interface optimization strategy

基于负极界面优化的重要性, 目前虽然已有部分研究对负极界面改性、电解质工程等单一技术方向进行了总结, 但能够系统性梳理从电极到电解液、隔膜的多维度协同优化策略, 并将实验研究与计算模拟深度融合的综述仍较为匮乏. 尤其缺乏对“机理解析—性能预测—实验验证”这一闭环研究范式的深入探讨, 导致领域内知识体系呈现碎片化, 难以有效推动 AZIBs 研究从传统的经验试错向精准的理性设计跨越. 本综述旨在填补这一空白, 系统总结了近年来 AZIBs 界面优化策略的最新进展, 重点分析负极界面调控、电解质优化与隔膜调控等策略的作用机制, 并强调理论计算与机器学习在界面设计与性能优化中的关键作用, 为下一代高性能水系锌电池的开发提供全面参考和前瞻指导. 下文将依次从界面问题根源、界面优化策略与虚拟开发技术三个方面展开详细论述.

1 水系锌离子电池界面优化研究进展

在电化学储能器件中, 界面(图 S2)是电极材料与电解质相互接触并发生物质交换、能量传递及电荷转移的物理化学区域^[26]. 当电极与电解液接触时, 电极与电解液之间会产生热力学势隙. 随着电池电压的恒定上升/下降, 电极和电解液之间的电化学反应将被触发, 并在两相边界之间产生一些新的物质. 在 AZIBs 中, 界面处不仅进行 Zn^{2+} 可逆

的沉积/剥离这一主反应,同时也是多种副反应的温床,例如析氢、钝化层形成以及腐蚀等(图S2),这些界面问题相互关联、彼此加剧,共同导致电池库仑效率下降、循环寿命缩短,甚至诱发内短路、胀气等安全隐患。因此,深入理解界面问题的本质,揭示其背后的热力学与动力学机制,并发展有效的界面调控策略,是提升AZIBs综合性能,推动其走向实际应用的核心课题。

1.1 界面问题及其本质

1.1.1 析氢反应(HER) 析氢反应(HER)是水系锌离子电池中关键且常见的界面副反应,其反应原理为连续3步过程。首先,电化学吸附步骤(Volmer步骤):溶液中的水合质子(H_3O^+)或水分子(H_2O)迁移至锌电极表面并吸附,获得一个电子还原为吸附态氢原子(H^*)^[27]。生成 H^* 后,反应沿两条路径之一进行:①Heyrovsky步骤(电化学脱附)中, H^* 与另一 H_3O^+ 结合并得电子,还原生成 H_2 ;②Tafel步骤(化学复合)中,两个相邻 H^* 直接结合形成 H_2 ^[28]。该反应以质子快速传质得电子为开端,最终析出 H_2 ,引发电解质组分劣化影响离子传输、锌负极钝化影响充放电效率、电池内压陡升引发鼓包等后果,严重损害电池的安全性与稳定性。

1.1.2 锌枝晶 锌枝晶生长是影响电池安全性的关键问题,其形成与沉积动力学及界面环境密切相关。初始成核阶段,因电极表面电场分布不均或存在缺陷,锌离子优先在高曲率凸起处沉积,形成初始晶核^[29]。晶核生成后,枝晶通过两种机制加剧生长:一是尖端增强机制,尖端电流密度集中, Zn^{2+} 持续优先在此还原,推动纵向快速生长;二是扩散控制机制,体相 Zn^{2+} 界面扩散速率低于沉积速率,引发浓差极化,促使锌在凸起处沉积^[30]。 Zn^{2+} 沉积不均最终导致尖锐金属锌晶体形成并持续生长,最终引发电池安全性下降、容量衰减、循环寿命与库仑效率显著降低等严重后果。

1.1.3 钝化层形成 钝化层的形成也是一类严重影响电极界面稳定性和电池性能的关键问题。从反应原理上看,钝化层源于多种界面副反应的共同作用。首先,局部碱性环境生成步骤:由于析氢等副反应持续消耗质子,电极表面pH值显著升高。在碱性条件下,电解质中的 Zn^{2+} 与 OH^- 结合,生成氢氧化锌等中间产物^[31]。随后,发生脱水或转化步骤,氢氧化锌进一步转化为更稳定的氧化锌或其他不溶性锌盐(如碱式硫酸锌等)。这些难溶性产物不断在锌负极表面沉积和覆盖,最终形成一层致密

且绝缘的钝化膜。钝化层的形成一方面会阻碍 Zn^{2+} 的传输和沉积,显著增加界面阻抗,引起极化电压升高和容量衰减^[32]。另一方面,钝化膜的分布不均会诱发局部电流集中,加剧锌枝晶生长^[33]。随着循环的进行,钝化层不断积累增厚,导致活性锌与电解质之间的接触失效,造成不可逆容量损失,严重制约电池的循环寿命和可逆性能。

1.1.4 腐蚀反应 电极腐蚀也是一类严重电池寿命的界面副反应。从反应原理上看,锌电极的腐蚀是一个自发的化学-电化学耦合过程。首先,阳极溶解步骤:金属锌在电解质中自发失去电子,被氧化为锌离子(Zn^{2+})并进入溶液($\text{Zn} \rightarrow \text{Zn}^{2+} + 2\text{e}^-$)。与此同时,阳极析氢步骤:电解质中的水合质子(H_3O^+)或水分子(H_2O)在锌表面接收电子,被还原生成氢气($2\text{H}_3\text{O}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2 \uparrow + 2\text{H}_2\text{O}$ 或 $2\text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2 \uparrow + 2\text{OH}^-$)。这两个耦合反应在锌表面构成局部腐蚀原电池,持续消耗活性锌并产生氢气^[17]。整个腐蚀过程始于锌的热力学不稳定性,在电解液中自发进行,最终导致活性物质损失和界面失效。一方面,该反应不可逆地消耗金属锌负极,造成活性物质不断减少,导致电池容量衰减和库仑效率降低。另一方面,伴随腐蚀产生的氢气,还会引发电池内压升高,带来鼓包、漏液等安全隐患。

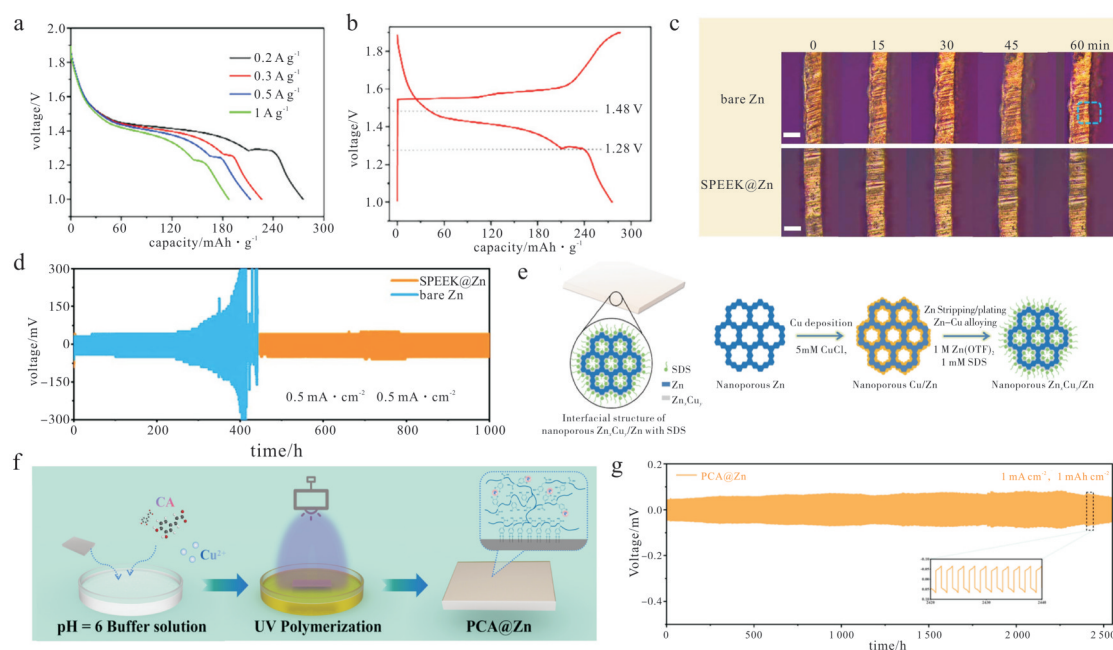
1.2 界面优化策略

1.2.1 负极表面调控 锌金属表面修饰作为提升水系锌离子电池性能的关键策略,近年来受到广泛关注。其核心在于通过表面工程手段调控锌负极的电荷沉积行为,改善电极的稳定性与可逆性^[34]。从三维结构设计^[35]、人工界面功能层(artificial functional layer, AFL)构建^[36]到合金化策略^[37]以及锌金属表面修饰^[38]的引入,研究者们致力于从多角度解决锌枝晶生长、副反应发生及沉积不均匀等问题,显著提升电池的循环寿命与综合电化学性能^[39]。下文旨在系统梳理锌负极表面修饰的主要方法及其作用机制,为进一步推动高能量密度、长周期稳定的锌离子电池发展提供参考。

传统的锌负极是二维结构,在沉积锌负极的过程中,枝晶生长、沉积不均匀以及界面不稳定等问题,在一定程度上会限制锌离子电池的性能和长期稳定性。在三维负极工程中,Su等^[40]利用多孔镍纳米管膜(holey nickel nanotube membrane, HNNM)作为导电骨架,通过电沉积构建了HNNM@Zn复合负极(图2a)。该三维骨架显著增强电子电导率

与离子传输速率,使电极在 $0.2 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$ 电流密度下释放出 $275.5 \text{ mAh} \cdot \text{g}^{-1}$ 的高比容量(图 2b),并且在 1.38 V 工作电压下同样表现出优异的循环稳定性(图 2c). 在负极人工界面层方面,Song 等^[41]利用滴涂工艺在锌负极表面形成含磺酸基团(sulfonic groups)的高聚物——硫酸化聚醚醚酮[sulfonated poly(ether ether ketone), SPEEK]固体电解质界面膜(solid electrolyte interphase, SEI),改善了锌负极中局部电位高而导致枝晶产生的沉积问题(图 2d). SPEEK 中的磺酸基团($-\text{SO}_3^-$)可以为 Zn^{2+} 提供更多的配位位点,促使 Zn^{2+} 均匀沉积,避免由高电流密度所引起的枝晶生长(图 2e). 测试结果显示在电流密度为 $0.5 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时,采用滴涂法制备的 SPEEK@Zn 电极可以长时间循环 1 000 h 以上,具有优异的沉积/剥离循环行为(图 2f). 以合金界面结构进一步优化为目的,

Meng 等^[42]利用阴离子表面活性剂辅助原位合金化策略,构建了三维纳米多孔 Zn_xCu_y 负极(图 2g). 该合金界面不仅通过重构 Zn^{2+} 扩散场诱导均匀沉积,降低成核能垒,还借助 Zn_xCu_y 与 Zn 间的电偶作用促进了剥离动力学(图 2h). 得益于此,电池实现了极低的负极电压极化与长达 1 900 h 的稳定循环(图 2i). 锌金属表面修饰同样是解决水系锌离子电池界面不稳定性的重要手段,Lu 等^[38]在锌金属负极表面原位构建了一层具有有限域 Cu 活性位点和富含氧基团的多功能 PCA 界面层,通过屏蔽电解液中的活性水分子,可以显著抑制锌负极的腐蚀. 同时,它还能作为锌离子传输通道,强化 Zn^{2+} 的传输与沉积动力学,从而展现出优异的循环稳定性,采用 PCA@Zn 负极与 I 正极组成的全电池体系在 $1.0 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$ 的电流密度下可稳定循环超过 1 000 次.



a. HNNM 电池在不同电流密度下的首圈恒电流充放电电压曲线; b. HNNM 电池在 $0.2 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$ 下首次循环的恒电流充放电电压曲线以及放电范围; c. 裸锌表面与 SPEEK@锌表面锌沉积的光学显微图像; d. 电池的长循环性能示意图; e. 铜修饰纳米多孔锌表面合金化制备的纳米多孔壳/核结构 $\text{Zn}_x\text{Cu}_y/\text{Zn}$ 片示意图; f. PCA@Zn 制备过程示意图(插图:PCA 链三维互连框架); g. PCA@Zn 对称电池在 $1.0 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$ 电流密度下的循环性能

图 2 锌负极界面调控策略^[40-42]

Fig. 2 Interface regulation strategies for zinc anodes^[40-42]

总的来说,尽管现有策略在稳定锌负极方面成效显著,但其实用化仍面临严峻挑战. 例如三维结构设计制备复杂且可能牺牲能量密度^[43]; AFL 长期稳定性和大规模制备均匀性仍面临挑战^[44];合金化策略中合金层的精确控制和非活性质量引入是关键问题^[45];锌金属表面修饰层的化学稳定性、与

锌基底之间的机械结合强度以及电极连续体积变化下的耐久性仍是需要解决的瓶颈. 因此,未来发展趋势在于多种策略的协同与集成,通过三维骨架与多功能界面结合等融合创新,共同推动水系锌离子电池向高能量密度、长寿命和高安全性的实用化方向迈进.

1.2.2 电解液工程 尽管锌负极界面调控方面取得了显著进展,但这些策略大多聚焦于固相界面的修饰与优化.要实现水系锌离子电池性能的根本性突破,还须将研究视角从电极表面延伸至其相互作用电解液本体^[46].高浓度电解液设计与功能添加剂引等策略通过调控 Zn^{2+} 溶剂化结构、抑制水活性、诱导均匀沉积与构建稳定界面层,能显著提升AZIBs的电化学性能^[47].

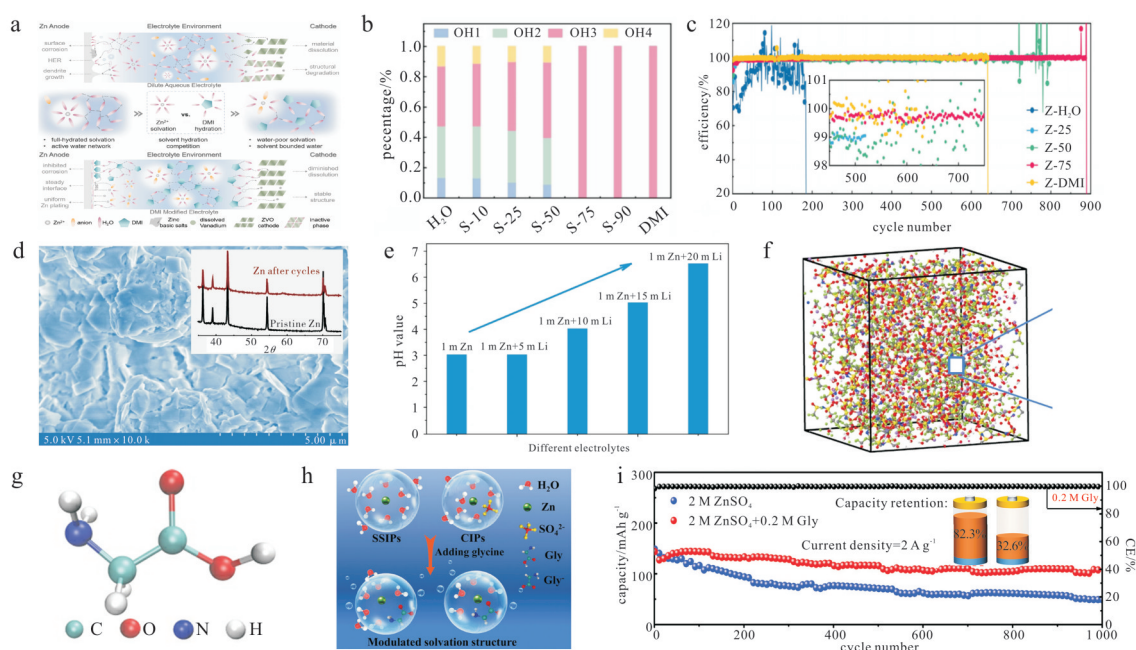
高浓度电解液,即“water-in-salt (WIS)”体系,是抑制水系锌离子电池中水活性的有效策略^[48].在“WIS”电解液体系中,通过大幅提高锌盐浓度,改变电解液的溶剂化结构^[4].以 $ZnSO_4$ 水系电解液为例,当浓度提升时, Zn^{2+} 的溶剂化结构从常规的溶剂分离离子对(solvent-separated ion pair,SSIP)型($Zn(H_2O)_6^{2+}$)逐渐向接触离子对(contact ion pair,CIP)型 $[Zn^{2+}(H_2O)_5 \cdot OSO_3^{2-}]$ 转变, SO_4^{2-} 进入溶剂化壳层取代部分水分子^[49].这种结构变化减少配位水分子的数量,有效抑制HER的发生.Zhou等^[50]研究了通过溶剂水合竞争降低水活性以提升水系锌金属电池稳定性的策略(图3a).核心是利用1,3-二甲基-2-咪唑啉酮(1,3-dimethyl-2-imidazolidinon,DMI)的类阳离子水合行为,形成DMI(H_2O)₆簇,一方面减少自由水、削弱 $Zn^{2+}-H_2O$ 配位,重建低活性水网络和贫水溶剂化结构的电解质环境;另一方面促进SEI层形成,抑制腐蚀与枝晶生长.结果显示,优化后的电解液使锌阳极库仑效率达99.74%,循环寿命延长至1420h;ZVO阴极循环3500次后容量保持率达81.31%,证实了该策略对电极双侧稳定性的同步提升(图3b和3c).与此同时,Wang等^[10]将 $1\text{ mol}\cdot\text{kg}^{-1} Zn(TFSI)_2$ 与 $20\text{ mol}\cdot\text{kg}^{-1} LiTFSI$ 的水溶液作为电解液,结合红外傅里叶变换和核磁共振分析离子与水的相互作用(图3d和3e).结果表明,随着LiTFSI浓度的增加,FTIR光谱中氢键强度显著降低,说明水的氢键网络被严重破坏;同时,NMR中¹⁷O化学位移明显下降,反映出 Li^+ 强烈地吸引了水分子中氧原子的孤对电子.在高浓度 Li^+ 的作用下,大量水分子被限制在 Li^+ 的溶剂化结构中,从而减少了 Zn^{2+} 溶剂化壳层中的结合水,显著抑制了 Zn^{2+} 的水解反应(图3f).除高浓度电解液之外,功能添加剂也是优化电极-电解液界面的重要策略之一^[47].Li等^[51]受锌指蛋白中氨基酸链与 Zn^{2+} 具有高亲和力这一特性的启发,将一种经济环保的甘氨酸添加剂引入水系电解质中,以稳定锌阳

极(图3g和3h).实验表征和理论计算证实,甘氨酸添加剂不仅能通过部分取代配位水重构水合 Zn^{2+} 的溶剂化鞘层,还能优先吸附在锌阳极表面,从而显著抑制枝晶生长和界面副反应.因此,采用甘氨酸改性电解质组装的 $Zn \parallel \alpha-MnO_2$ 全电池在 $2\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 的电流密度下循环1000次后,仍能保持82.3%的容量(图3i).同时,Liang等^[52]选取酒石酸钠(sodium tartrate,TA-Na)作为双功能电解质添加剂,以提升AZIBs的可逆性.酒石酸根阴离子优先吸附在锌表面,其高亲核性的羧酸盐基团会与 Zn^{2+} 配位,促进 $[Zn(H_2O)_6]^{2+}$ 的去溶剂化,促使锌在有利的(002)晶面均匀沉积,同时抑制副反应和枝晶生长.因此, $Zn \parallel Zn$ 电池在 $0.5\text{ mA}\cdot\text{cm}^{-2}$ 下表现出超过1500次循环的长期循环稳定性,并在 $1\text{ A}\cdot\text{g}^{-1}$ 下循环寿命达1000次.

综上所述,电解液工程通过高浓度电解液设计与功能添加剂引入,为水系锌离子电池的性能提升提供了关键解决方案.然而,高浓度电解液实际应用仍面临成本高昂(如TFSI⁻基盐)、 Zn^{2+} 传输动力学迟缓、倍率性能受限以及高黏度导致的工艺适配性差等挑战^[53],功能添加剂还存在存在长期循环中的消耗、与电极或电解质的兼容性问题.未来对电解液工程作用机理的深入理解仍需加强^[54].

1.2.3 隔膜优化 隔膜是二次电池的关键组件,置于正负极之间,其核心作用是阻止电子内部短路,同时保障离子的高效传输^[55].通过对隔膜的结构与表面特性进行精准调控,能够显著提升离子传输效率、增强电池循环稳定性与安全性,这为开发高性能锌电池提供了重要解决方案.下文将主要介绍近年研究较多的亲锌性隔膜、离子筛隔膜、两性离子调控隔膜等,并总结隔膜调控在界面优化中的相关应用.

传统的聚丙烯腈(polyacrylic fibre, PAN)作为隔膜时,锌离子的迁移高度受限,针对这一问题,Chen等^[56]提出向聚丙烯腈隔膜引入铁镍基普鲁士蓝类似物(FeNi-PBA)实现隔膜筛分作用(图4a).研究发现,FeNi-PBA@PAN隔膜在 Zn^{2+} 电池中具有很强的离子筛分效应,即有助于加快 Zn^{2+} 的传输速率,通过强阳离子位点抑制 SO_4^{2-} 离子迁移,实现锌离子在电池的均匀分布,抑制Zn枝晶的生长,其锌对称电池使用此改性隔膜在 $1\text{ mA}\cdot\text{cm}^{-2}$ 电流密度下循环2700h,表现出优异的稳定性(图4b).Cheng等^[57]通过静电纺丝制备两性离子(甲基丙烯酸酐乙基磺基甜菜碱,SBMA)改性的PAN纳米纤维



a. 引入 DMI 的水合作用以调控具有低活性水的电解液环境; b. DMI/水体系中不同状态水的分数; c. 具有不同电解质的 Zn/Cu 电池的循环性能; d. 锌阳极在 HCZE 中剥离/镀 500 次后的 SEM 图像和 XRD 图; e. 不同 LiTFSI 浓度下电解质的 pH 值, m 表示 $\text{mol} \cdot \text{kg}^{-1}$; f. HCZE ($1 \text{ mol} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ Zn}(\text{TFSI})_2 + 20 \text{ mol} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ LiTFSI}$) 在 363 K 下的 MD 模拟单元快照; g. 甘氨酸的分子结构; h. 添加/不添加 Gly 的 Zn^{2+} 水合溶剂化结构示意图; i. $\text{Zn}||\alpha\text{-MnO}_2$ 全电池在 $2 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$ 电流密度下测试的循环性能

图 3 电解液工程优化电池性能^[10, 50-51]

Fig. 3 Electrolyte engineering optimizes battery performance^[10, 50-51]

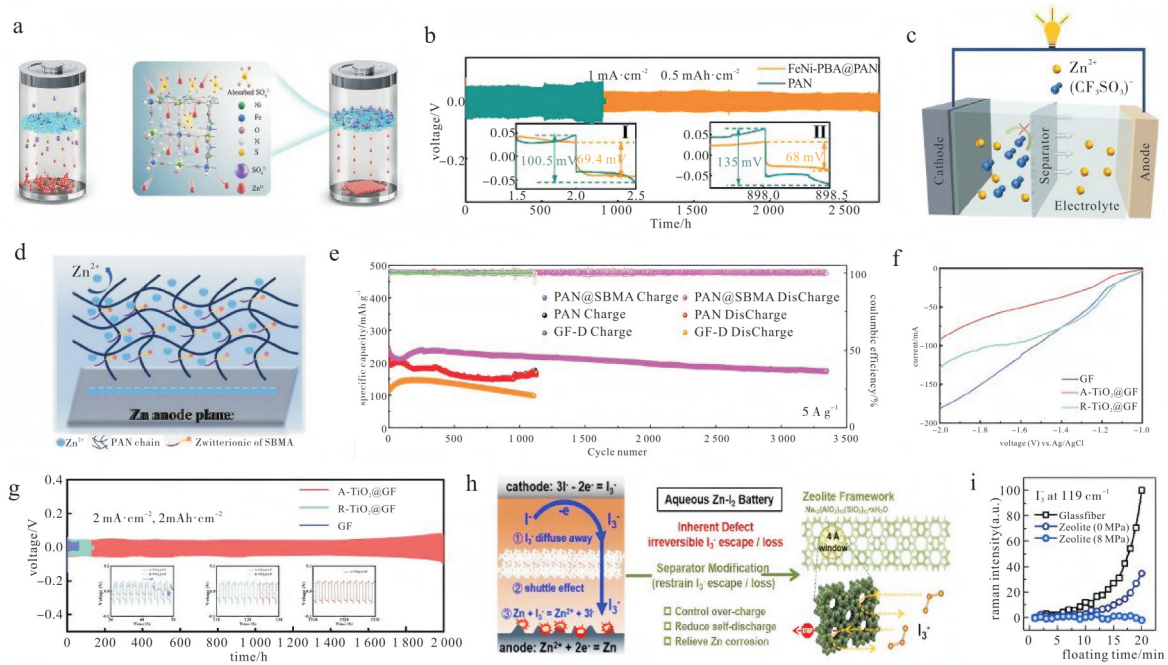
隔膜(图 4c). SBMA 中的磺酸基团($-\text{SO}_3^-$)不仅优化了纺丝前驱体的静电性质,更通过强极性作用调控 Zn^{2+} 迁移通量,实现电场的均匀化分布(图 4d). 得益于此,该隔膜组装的对称电池稳定循环长达 1 700 h, $\text{Zn}||\text{PAN}@\text{SBMA}||\text{NH}_4\text{V}_4\text{O}_{10}$ 全电池在 $5 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$ 下循环 2 000 次后容量保持率仍达 84.2%(图 4e). 传统的隔膜缺乏对锌离子的亲和力,使得 Zn^{2+} 非均匀沉积,并导致电池的失效. Lü 等^[58] 针对传统隔膜的问题,设计了一种锐钛矿型 $\text{TiO}_2(\text{A-TiO}_2)$ 涂层隔膜. 该涂层通过提升 Zn^{2+} 迁移数(0.70)和降低成核过电位(19 mV),有效引导锌均匀沉积并抑制枝晶生长. 同时,其较低的 HER 活性和对水分子的竞争吸附,显著抑制了 H^+ 迁移和副反应,减少了界面腐蚀(图 4f). 在 ZnSO_4 电解液中,采用该隔膜的锌对称电池实现了超 2 000 h 的稳定循环(图 4g),全电池($\text{Zn}||\text{CaV}_8\text{O}_{20}$)在 1 000 次循环后仍保持 $142 \text{ mAh} \cdot \text{g}^{-1}$ 的高比容量. 该研究为通过隔膜晶体结构调控提升锌离子电池性能提供了有效策略. Li 等^[59] 开发了一种致密、柔性且可宏量化的沸石分子筛膜,利用其有序孔道物理阻隔 I_3^- 穿梭(图 4h). 该筛分机制将多碘离子有效限域在正极侧,显著缓解了自放电与锌腐蚀(图 4i). 得益于此, $\text{Zn}-\text{I}_2$ 电池的库仑效率(CE)在 $0.2 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$ 下

从 78.9% 提升至 98.6%,且在 $4.0 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$ 下循环 30 000 次后容量保持率仍高达 91.0%.

综上所述,相关新型隔膜设计策略通过引入亲锌位点、构建筛分通道、利用静电作用或梯度功能设计,在提升锌离子电池电化学性能和安全性方面展现出显著潜力. 然而,该类隔膜技术仍面临一些挑战:改性材料的引入可能增加隔膜的制备复杂性和成本;部分功能涂层在长期循环中的结构稳定性尚待进一步验证;此外,多功能隔膜的设计需在离子选择性、亲锌性和机械强度之间实现平衡,其对大规模量产和实际应用的适应性仍需系统评估^[60]. 未来研究应致力于开发结构-功能一体化隔膜,在保障性能的同时兼顾制备经济性 with 界面稳定性,为高性能、高安全性的锌离子电池产业化提供可靠支撑.

2 虚拟开发在水系锌离子电池中的应用

虚拟开发技术为电池材料界面优化提供全新视角与研究范式. 传统实验表征手段虽能提供界面反应的宏观现象与静态信息,却难以实时捕捉原子尺度的动态过程和电子层面的作用机制. 随着



a. 使用 PAN 隔膜(左)和 FeNi-PBA@PAN 隔膜(右)沉积锌离子的示意图; b. 使用 PAN 隔膜和 FeNi-PBA@PAN 隔膜的锌||锌对称电池的长期恒电流充/放电循环电压曲线; c. 电池中 PAN 隔膜的工作机制; d. 通过 PAN@SBMA 隔膜的锌离子电镀行为示意图; e. 分别使用 GF-D, PAN, PAN@SBMA 的全电池的长循环性能(电流密度为 $5 \text{ A} \cdot \text{g}^{-1}$); f. 使用不同纤维隔膜的锌阳极析氢极化曲线; g. Zn||GF||Zn, Zn||R-TiO₂@GF||Zn 和 Zn||A-TiO₂@GF||Zn 电池的充放电循环电压曲线; h. 因固有缺陷引发的库仑效率低、自放电导致的能量损失以及锌腐蚀以及沸石分子筛工作机制示意图; i. 拉曼强度(基于 119 cm^{-1} 处的 I_3^-)的浮动时间依赖性

图 4 隔膜优化策略^[56-59]

Fig. 4 Separator optimization strategy^[56-59]

计算科学的发展,研究范式正逐渐从依赖试错的实验探索,转向深度融合理论模拟和数据驱动的虚拟设计与开发.

根据理论基础与应用特点,虚拟开发技术可分为传统物理化学计算与新兴的数据驱动方法 2 大类.前者以 DFT 计算和 MD 模拟为代表;DFT 基于量子力学原理,可精准解析界面电子结构,预测吸附能、扩散能垒及反应路径等关键参数^[61];MD 模拟则依托经典力学,追踪原子/分子运动轨迹,动态揭示溶剂化结构演变和界面动态行为^[62].后者则以 ML 技术为核心,通过从海量数据中挖掘材料“构效关系”,实现高通量筛选与性能预测^[63].二者的深度融合与协同应用,正逐步形成一套贯穿电子—原子—宏观尺度的多尺度计算模拟体系,为锌电池及其他能源材料界面工程的理性设计提供强大支撑.

2.1 传统物理化学计算方法

2.1.1 传统计算在负极界面调控中的应用

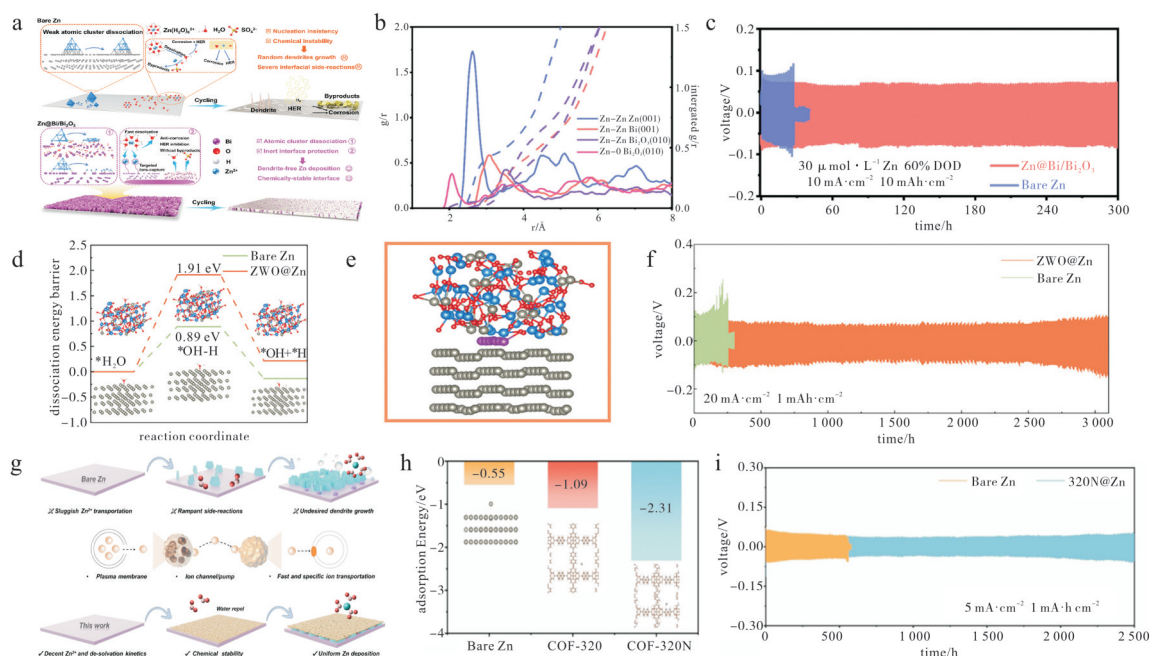
锌金属负极在实际应用中面临着枝晶不可控生长与副反应频发的严峻挑战,严重制约了锌基电池的循环寿命与安全性.为应对这一难题,研究者提出了界面保护层构建、晶面工程及多孔框架材料设计等

多种策略,旨在从热力学与动力学层面协同调控锌的沉积行为与界面微环境.近年来,随着理论模拟与数据驱动方法的深度融合,DFT、MD 以及结合二者的从头算分子动力学(ab initial molecular dynamics, AIMD)等技术已被广泛应用于揭示锌成核、生长及界面稳定性的微观机制,为理性材料设计与界面优化提供了坚实依据.

Luo 等^[64]通过 DFT 计算系统研究了 MXene ($\text{Ti}_3\text{C}_2\text{T}_x$) 表面官能团对锌阳极保护机制的影响.计算结果表明,所有官能团均赋予 MXene 良好的导电性和结构稳定性,且对 Zn^{2+} 的吸附能均高于 H_2O ,这有利于脱溶剂化并抑制析氢反应,同时 HER 自由能计算显示卤素官能团具有高析氢能垒 ($|\Delta G| > 250 \text{ meV}$),可有效抑制副反应.在复合界面层设计与机理研究方面,多相界面层可通过协同作用调控锌沉积动力学(图 5a),Tian 等^[65]通过 AIMD 模拟研究 Bi/Bi₂O₃ 复合界面层中 Zn_n 原子簇在不同表面的解离行为(图 5b),发现 Bi(001) 表面吸附能较低 (-1.01 eV) 且解离能垒仅为 0.046 eV ,促进 Zn 原子簇分解为单原子,而 Bi₂O₃(010) 表面通过 Zn—O 键 (0.205 nm) 稳定吸附 Zn 并凭借疏水性抑制 HER.计算揭示的热力学调控机制经实验

验证:对称电池在 $10 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$ 、60% 放电深度下循环 300 h 无短路(图 5c). Yi 等^[66]先通过 DFT 计算对比了晶态与非晶态 ZWO 的 Zn^{2+} 扩散性能,发现非晶态 ZWO 扩散能垒(0.19 eV)较晶态(0.36 eV)降低 47%,表明其具有更高效的离子通道,然后通过计算得知 H_2O 在 $\text{ZWO}@\text{Zn}$ 表面解离能垒(1.91 eV)显著高于裸 Zn(0.89 eV)(图 5d),证实其有效抑制 HER,并通过 DFT 分析迁移路径(图 5e),揭示短程各向同性传输机制,为 ZWO 界面层在促进均匀沉积、抑制枝晶和副反应方面的作用提供理论支撑,使 Zn 阳极在 $20 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$ 下实现超 3 000 h

稳定循环(图 5f). Zhang 等^[67]利用 DFT 和 MD 模拟研究了仿生共价有机框架(covalent organic frameworks, COF)材料三维 COF-320N 膜对锌沉积的调控机制(图 5g):首先 DFT 计算显示吡啶 N 位点对 Zn 原子吸附能达 -2.31 eV ,促进均匀成核(图 5h);MD 模拟表明 $[\text{Zn}(\text{H}_2\text{O})_6]^{2+}$ 在通道内逐步脱去 3 个水分子,显著降低去溶剂化能垒.除此之外,MD 模拟还进一步显示其可破坏溶剂化鞘层、减少自由水,协同抑制 HER. 该计算研究为 COF-320N@Zn 对称电池在 $5 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$ 下实现 2 500 h 循环寿命提供了理论解释(图 5i).



a. 循环过程中裸锌电极(上)和 $\text{Zn}@\text{Bi}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 电极(下)上离子沉积行为和界面化学的示意图; b. Zn 原子团簇的 Zn 原子与 Zn(001)、Bi(001)和 $\text{Bi}_2\text{O}_3(010)$ 平面的表面原子的 RDF 和积分 $g(r)$ (用虚线标记); c. 在裸锌和 $\text{Zn}@\text{Bi}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 对称电池的长期循环性能; d. H_2O 在裸锌和 $\text{ZWO}@\text{Zn}$ 上的解离能垒,以及相应的 IS、TS 和 FS 结构; e. 在非晶态 $\text{ZWO}@\text{Zn}$ 的界面结构中, Zn^{2+} 的优化迁移路径; f. 裸锌和 $\text{ZWO}@\text{Zn}$ 对称电池的长期循环性能和选定的电压-时间曲线; g. 具有独特锌沉积行为的 COF 阴离子离子液体(aprotic ionic liquids, AILs)设计理念的示意图; h. Zn 原子在 Zn 板、COF-320 和 COF-320N 上的吸附能,插图展示了吸附模型; i. $5.0 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}/1.0 \text{ mA} \cdot \text{h} \cdot \text{cm}^{-2}$ 条件下的 GCD 测试

图 5 计算模拟辅助锌负极界面优化^[65-67]

Fig. 5 Computational simulation-assisted interface optimization of zinc anodes^[65-67]

综上所述,DFT、MD 及 AIMD 等理论模拟方法,在揭示锌金属负极界面修饰机制方面展现出显著优势:能够从原子/电子尺度精准解析官能团作用、离子迁移能垒、溶剂化结构演变及界面反应动力学,为材料理性设计与界面优化提供了关键理论依据,有效推动高性能锌负极在均匀沉积、枝晶抑制与副反应控制等方面的突破.然而,当前模拟研究仍存在一定局限性:多数工作集中于理想表面或有限尺度模型,难以完全复现实际电极-电解液界

面的复杂动态过程;溶剂化结构稳定性、双电层重构及长周期沉积演化等多尺度耦合行为的模拟精度仍受计算资源限制;此外,现有力场参数和泛函对锌体系特别是涉及强关联效应和溶剂动态竞争的界面反应描述仍存在偏差.未来需进一步发展多尺度建模与机器学习融合的高通量计算方法,并加强模拟结果与原位实验表征的相互验证,从而构建更真实可靠的界面模型,最终实现锌电池界面行为的精准预测与优化设计.

2.1.2 传统计算在电解质优化中的应用 锌金属电池在实际应用中面临析氢和腐蚀等副反应的严重挑战,其根源往往与电解液中自由水分子及连续的氢键网络密切相关^[68].为提升锌负极的界面稳定性和沉积可逆性,研究者日益关注通过电解液组分设计来调控 Zn^{2+} 的溶剂化结构,以抑制副反应并优化沉积行为^[69].近年来,功能型添加剂、共溶剂系统、仿生限域界面等多种策略被广泛探索,MD和DFT等模拟手段,从原子尺度揭示了溶剂化结构调整、氢键网络重构、界面限域脱水及竞争吸附等关键机制.

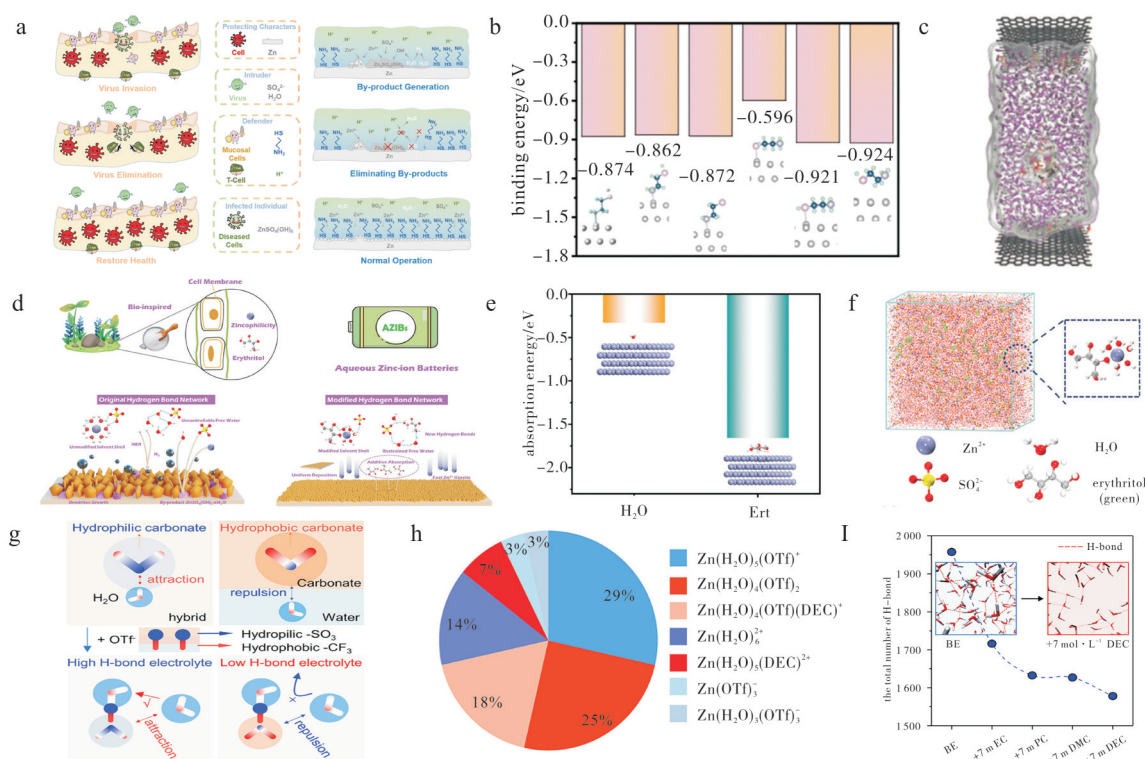
Wang等^[70]受生物免疫系统启发,采用多尺度模拟方法研究了巯乙胺盐酸盐(Cy-H)添加剂的界面行为与副反应抑制机制(图6a).DFT计算表明,Cy分子中的-SH基团在Zn(002)晶面上的吸附能(-0.924 eV)高于-NH₂基团(-0.874 eV),显示其优先吸附可阻隔水分子和SO₄²⁻,抑制副反应(图6b);MD模拟进一步揭示Cy-H可在内亥姆霍兹层(inner Helmholtz plane, IHP)边界聚集并重构双电层(图6c),提升离子传输和界面稳定性.经验证,使用Cy-H电解液的Zn||I₂全电池在2 A·g⁻¹下循环8 000次容量保持率达95%,且软包电池在1 A·g⁻¹下稳定运行1 000次无衰减.Zhang等^[71]通过DFT计算与MD模拟研究了赤藓糖醇(erythrodilol, Ert)添加剂的作用机制(图6d):DFT计算显示Ert与Zn²⁺的吸附能(-1.66 eV)远高于与水的吸附能(-0.33 eV)(图6e),表明其容易参与溶剂化;MD模拟进一步证实Ert可取代部分水分子形成稳定的[Ert-Zn(H₂O)₅]²⁺结构(图6f),减少自由水并重构氢键网络,抑制HER及其他副反应.基于机理引导的优化,电池表现出优异的长循环稳定性(Zn||Zn对称电池寿命超1 800/2 400 h)、高可逆性(Zn||Cu半电池库仑效率达99.72%)及全电池下的良好容量保持率(75.2%).Deng等^[72]受生物离子通道启发,通过MD模拟研究亚纳米孔道中的离子传输行为:建立狭缝电极模型发现,当孔径从3.4 nm减小到0.6 nm时,K⁺配位数急剧下降,表明发生离子脱水;在0.8 nm孔径下,电压增强可进一步驱动脱水,RDF分析显示K⁺-O(water)距离从0.285 nm压缩至0.275 nm,部分水分子从溶剂化壳层丢失.同一研究还通过MD分析水分子取向,发现随孔径减小,垂直于表面排列的水分子概率降低,表明亚纳米约束改变了界面水分子有序性.Miao等^[73]通过MD模拟结

合径向分布函数(radial distribution function, RDF)分析,研究了共溶剂碳酸二乙酯(diethyl carbonate, DEC)对Zn²⁺溶剂化结构及氢键网络的影响(图6g):在基线电解液(BE)中,Zn²⁺主要形成[Zn(H₂O)₆]²⁺结构(占比81%),而加入7 mol L⁻¹ DEC后,溶剂化鞘层变为[Zn(H₂O)₄(OTf)(DEC)]⁺(占比25%)等多种结构(图6h),配位水分子数显著下降,有效抑制水的分解反应.进一步通过氢键网络分析发现,DEC的引入使水分子间氢键从1 716个降至1 578个(图6i),表明其疏水性可显著破坏氢键网络、降低水活性.

由此看来,DFT、MD等多尺度模拟方法在揭示电解液添加剂作用机制、离子传输行为及溶剂化结构调整方面同样展现出强大能力,不仅从分子层面阐明了界面吸附、溶剂化鞘重构、氢键网络演化和离子脱水等关键过程的微观机制,还为高性能锌离子电池的设计提供了坚实的理论依据与前瞻性指导.然而,当前模拟研究仍存在明显局限性:多数模拟基于理想化模型(如完美晶面、静态电场或简化电解质环境),难以真实复现实际电池中复杂的动态界面与电化学环境;对长期循环下界面结构演变、副产物累积效应及添加剂消耗等动态过程的模拟仍较缺乏;同时,现有力场参数对复杂多组分电解液体系的描述精度有限,而第一性原理计算受限于尺度和时间,难以兼顾电子结构精度与宏观动力学过程.未来研究需开发更精确的力场和多尺度耦合方法,结合机器学习势函数和高通量计算,以实现从电子级别到宏观性能的跨尺度精准预测,并加强与原位表征技术的联动验证,推动锌电池电解液及界面设计的数字化与智能化发展.

2.2 新型计算方法:机器学习

传统的材料开发模式依赖于经验和试错,其周期长、成本高且效率低下,已难以满足新时代对材料创新的要求^[74].特别是在界面层材料、电解质添加剂等复杂体系的设计中,多参数、多目标的耦合问题使得理性设计面临巨大挑战^[75].在这一背景下,ML方法凭借其强大的数据处理与模式识别能力,为界面过程的动态模拟、机制解析与材料设计带来了革命性机遇^[63,76].它通过整合多源数据、构建结构-性能映射关系,并耦合物理机理,从而加速对界面动态过程的理解与材料优化设计^[77].下文将重点探讨ML在界面层材料智能筛选、枝晶生长模拟与预测、电解质添加剂筛选、凝胶聚合物电解质设计等方面的应用,展示其如何推动电化学界



a. 生物体特异性免疫系统的工作机制和 Zn 阳极表面 Cy-H 添加剂副产物的特异性消除; b. Zn(002) 与 Cy-H 不同位点的吸附能; c. 从 MD 模拟中获得的 Cy-H; d. Ert 添加剂及其在 Zn 阳极上的工作机制; e. H₂O 和 Ert 分子在 Zn(002) 晶面上的吸收能量比较, 插图展示了相应的吸收模型; f. 从 MD 模拟获得的含 Ert 电解质系统的 3D 快照和 [Ert-Zn(HO)] 溶剂化结构的部分放大; g. 引入三氟甲磺酸盐(OTf⁻)阴离子前后, 水与疏水性碳酸酯助溶剂之间的混溶性/不混溶性结构演变的示意图; h. 来自 MD 模拟的二元电解质(BE+7 mol·L⁻¹ DEC)中可能的 Zn²⁺ 溶剂化鞘层组成分布; i. 使用 MD 模拟得到的不同电解质中水分子间氢键总数

图 6 计算模拟在电解质工程中的应用^[70-71, 73]

Fig. 6 Application of computational simulation in electrolyte engineering^[70-71, 73]

面研究从“试错”模式向智能设计的转变。

在界面层材料开发方面, Dong 等^[78]通过 ML 指导设计了一种铈-铁双金属有机框架(Ce-Fe MOF)界面层, 该界面层具有离子筛分通道、极性-CN 有机配体和亲锌的 Ce 阳离子, 能够降低 Zn(H₂O)_n²⁺ 转化为 Zn²⁺ 的去溶剂化能垒, 并促进均匀的 Zn²⁺ 沉积。实验结果表明, 采用该界面层的锌负极在 1 mA·cm⁻² 的电流密度下实现了超过 4 300 h 的循环寿命, 库仑效率高达 99.8%。在枝晶生长机制的模拟与预测方面, Zhao 等^[79]的一项研究通过二维卷积神经网络(convolutional neural network, CNN)模型和维也纳从头算模拟软件(Vienna Ab-initio simulation package, VASP)计算, 深入分析了电池中枝晶生长的动态过程。研究构建了 2 种 CNN 模型: CNN-1(未考虑物理变量)和 CNN-2(整合了温度、浓度梯度、电场强度等 7 个物理参数)。通过结果可知, CNN-2 表现出更高的预测准确性(训练集 R²=0.93, 测试集 R²=0.80), 并能动态模拟枝晶从 30 s 到 200 s 的生长过程。与传统模

拟方法对比之下, CNN-2 在计算效率和准确性上均具有很大的优势。在电解质添加剂筛选与设计方面, Luo 等^[80]通过 ML 预测有机分子的 Gutmann 给体数(donor number, DN 值), 以筛选高性能电解质添加剂。研究首先构建了包含 161 个已知 DN 值的有机分子数据集, 并基于 DFT 计算提取了最高占据分子轨道(highest unoccupied molecular orbital, HOMO)、最低未占分子轨道(lowest unoccupied molecular orbital, LUMO)、偶极矩、极化率和原子电荷等关键描述符(图 7a)。随后, 采用随机森林(random forest, RF)和梯度提升决策树(gradient boosting decision tree, GBDT)训练模型, 在测试集上分别达到 R²值为 0.775 和 0.785(图 7b 和 7c)。为进一步简化输入流程, 引入有向消息传递神经网络, 结合 QM9 和 CM5 电荷数据集构建深度学习模型, 实现从 SMILES 直接预测分子描述符(图 7d)。基于模型预测, 筛选出高 DN 值(DN=36)的异丙醇作为添加剂, 实验表明其可显著提升锌负极的循环稳定性(寿命超过 1 500 h)和库仑效率

(coulombic efficiency, CE, 达99%), 展现出优异的电化学性能(图7e). 在凝胶聚合物电解质优化与性能预测方面, Zhu等^[81]利用ML模型优化聚丙烯酰胺(polyacrylamide, PAM)基凝胶聚合物电解质(gel polymer electrolytes, GPEs)的设计, 以抑制锌负极的枝晶生长和腐蚀(图7f). 通过支持向量回归(support vector regression, SVR)和随机森林模

型, 预测GPEs的交流阻抗和腐蚀速率, 并结合神经网络算法提高了预测精度(图7g~7h). 研究发现, 高浓度PAM(10 mol·L⁻¹)通过高度缠结的聚合物链结构减少界面水分子接触, 从而显著抑制副反应. 电化学测试显示, 使用优化后的GPEs组装的Zn||Cu电池在1600次循环中库仑效率达99.63%, Zn||MnO₂电池的循环寿命超过9000次(图7i).

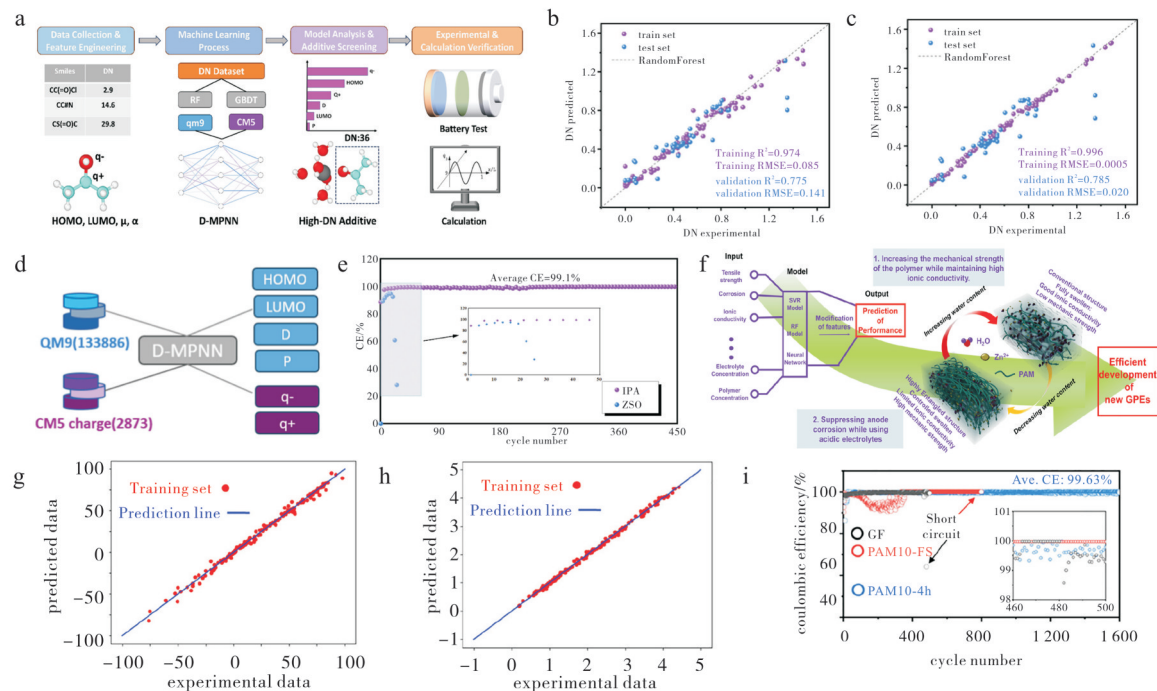


图7 机器学习在电解质工程中的应用^[80-81]
a. 高 DN 电解质添加剂的数据驱动设计示意图; b. RF 模型的性能; c. GBDT 模型的性能; d. 深度学习过程; e. 不同电解液中 Zn||Cu 电池的 CE 测试; f. 解释 ML 如何帮助开发基于 PAM 的半固体电解质的示意图; g. 腐蚀速率的实验数据与预测数据的比较; h. 交流阻抗预测中的实验数据与预测数据的比较; i. 在锌||铜半电池测试中获得的锌电镀/剥离库仑效率.

图7 机器学习在电解质工程中的应用^[80-81]
Fig. 7 Application of machine learning in electrolyte engineering^[80-81]

ML方法实现了从传统“试错”模式向数据驱动的智能设计的范式转变,为高性能锌电池界面材料、电解质添加剂及凝胶电解质的设计带来了革命性突破^[82]. 通过建立结构特征与性能之间的定量映射关系,ML不仅能够高通量筛选最优材料、精准预测枝晶生长等多物理场耦合行为,还可解析复杂构效关系,显著加速材料研发进程并降低实验成本. 然而,该技术在实际应用中仍面临若干挑战:现有模型严重依赖高质量标注数据集,而电池体系中可靠数据的稀缺制约了预测精度与泛化能力;ML模型的可解释性不足,其“黑箱”特性使得关键物理化学机制的提取仍存困难;此外,当前方法多集中于材料静态性质预测,对电池运行中动态界面演化、长周期性能衰减等过程的建模能力仍有待提升. 未来研究需致力于构建跨尺度、多任务

融合的ML框架,结合主动学习与迁移学习策略增强数据效用,并深化与物理模型、原位实验的协同验证,最终实现锌电池界面设计与优化的数字化、智能化与系统化.

3 局限与展望

水系锌离子电池的电池性能表现和寿命严重受制于电池界面的不稳定性. 针对相关界面问题,现有研究展开了多种界面优化策略,虽在一定程度上解决了部分难题,但实际界面优化过程中仍存在诸多局限,这些相关问题的根源深刻交织于电极材料的本征属性、电解液的溶剂化结构以及复杂的多相界面行为之中. 为了系统性地应对这些挑战,下面从电解质工程、虚拟开发技术、新型材料体系及创新界面优化四个核心维度出发,全面展望了未来

的发展方向,旨在为下一代高性能、长寿命 AZIBs 的理性设计提供前瞻性的理论指导和技术路径(图 8)。

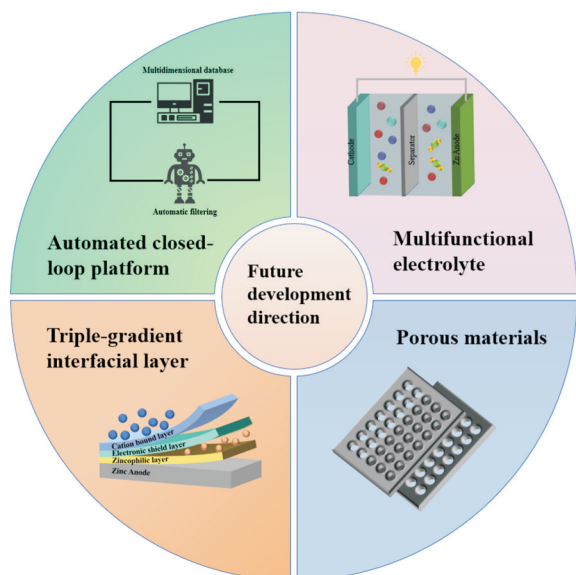


图 8 界面优化策略的未来展望

Fig. 8 Future prospects of interface optimization strategies

1) 电解质工程目前面临电化学窗口窄、界面副反应多以及温度适应性差等局限。为应对这些问题,需重点开发多功能电解液体系(例如 SnI_4 等可实现“一剂双效”的添加剂),引入具备智能响应特性的组分(如 pH 或温度自适应分子),并构建宽温域溶剂体系,从而拓宽电化学稳定窗口并动态抑制副反应。

2) 在计算研究方面,当前存在多尺度模型耦合不足、ML 可解释性低以及计算与实验闭环尚未建立等挑战。为此,虚拟开发应着力构建跨尺度计算模拟平台(融合 DFT、MD、相场和有限元方法),发展可解释的机器学习模型(如图神经网络 GNN、生成对抗网络 GAN 与条件变分自编码器 CVAE),并建立高通量计算—实验闭环系统,以提升材料筛选与设计的效率及可靠性。

3) 负极调控方面,主要挑战在于人工界面层机械性能与稳定性不足。未来需发展具备自修复能力的智能界面层,开发多组分高强度复合涂层,并推进“电解液—隔膜—电极”一体化调控策略,以实现锌均匀沉积并有效抑制界面副反应。通过这些策略的有机整合与协同推进,水系锌电池有望在性能、寿命和安全性方面实现突破,逐步走向大规模应用。

4) 界面优化策略的成功不仅依赖于负极侧的精准调控,也同样需要正极材料性能的突破。正极

材料目前仍受限于离子迁移能垒高、结构稳定性差和活性位点利用率低等问题。对此,应聚焦于设计大层间距宿主结构(如 COFs、MOFs 和 PBAs),推进缺陷工程与预嵌入策略以优化电子结构和离子扩散路径,开发具有协同氧化还原活性的混合维度与多孔材料,并构建多梯度电极结构,从而增强电荷传输效率与结构稳定性。

综上所述,尽管当前界面工程已取得显著进展,未来仍需从电解质体系创新、虚拟技术深化、正极材料革新及新型界面优化策略等多方面持续探索,以推动电池技术不断发展和体系完善。唯有通过跨学科深度融合,构建“理论计算—材料设计—实验验证—数据反馈”一体化全链条智能研发范式,才能突破现有技术瓶颈,加速水系锌离子电池从实验室走向大规模实际应用,为构建安全、高效、可持续的新型储能系统提供坚实基础。本研究为下一代高性能水系锌离子电池的开发提供了重要参考,并进一步强调了实验与理论计算相结合的研究范式在推动其实用化进程中的关键意义。

参考文献:

- [1] GOODENOUGH J B, PARK K S. The Li-ion rechargeable battery: a perspective[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2013, 135(4): 1167-1176.
- [2] ARMAND M, TARASCON J M. Building better batteries [J]. *Nature*, 2008, 451(7179): 652-657.
- [3] AURBACH D, LU Z, SCHECHTER A, et al. Prototype systems for rechargeable magnesium batteries [J]. *Nature*, 2000, 407(6805): 724-727.
- [4] SUO L M, BORODIN O, GAO T, et al. “Water-in-salt” electrolyte enables high-voltage aqueous lithium-ion chemistries[J]. *Science*, 2015, 350(6263): 938-943.
- [5] HOU S, JI X, GASKELL K, et al. Solvation sheath reorganization enables divalent metal batteries with fast interfacial charge transfer kinetics [J]. *Science*, 2021, 374(6564): 172-178.
- [6] HWANG J Y, MYUNG S T, SUN Y K. Sodium-ion batteries: Present and future[J]. *Chemical Society Reviews*, 2017, 46(12): 3529-3614.
- [7] KUNDU D, TALAIE E, DUFFORT V, et al. The emerging chemistry of sodium ion batteries for electrochemical energy storage [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2015, 54(11): 3431-3448.
- [8] LI M, LI Z L, WANG X P, et al. Comprehensive understanding of the roles of water molecules in aqueous Zn-ion batteries: From electrolytes to electrode materials[J]. *Energy & Environmental Science*, 2021, 14(7): 3796-3839.
- [9] FANG G Z, ZHOU J, PAN A Q, et al. Recent advances in aqueous zinc-ion batteries[J]. *ACS Energy Letters*, 2018, 3

- (10): 2480-2501.
- [10] WANG F, BORODIN O, GAO T, et al. Highly reversible zinc metal anode for aqueous batteries[J]. *Nature Materials*, 2018, 17(6): 543-549.
- [11] KUNDU D, ADAMS B D, DUFFORT V, et al. A high-capacity and long-life aqueous rechargeable zinc battery using a metal oxide intercalation cathode[J/OL]. *Nature Energy*, 2016, 1 [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1038/nenergy.2016.119>.
- [12] DONG L B, YANG W, YANG W, et al. High-power and ultralong-life aqueous zinc-ion hybrid capacitors based on pseudocapacitive charge storage [J/OL]. *Nano-Micro Letters*, 2019, 11 (1) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1007/s40820-019-0328-3>.
- [13] GUO Z Q, ZHAO S Q, LI T X, et al. Recent advances in rechargeable magnesium-based batteries for high-efficiency energy storage[J/OL]. *Advanced Energy Materials*, 2020, 10 (21) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/aenm.201903591>.
- [14] LI Y F, GOU Q Z, HE Y T, et al. Cooperative design of magnesium ions with cations or anions in 2D VS (2) electrodes[J]. *Nano Letters*, 2025, 25(36): 13614-13620.
- [15] NIE B L, YU S C, LU K, et al. Pre-zincification of sandwiched V (2) O (5) to accelerate intercalation kinetics and mitigate cathodic passivation in low N/P ratio zinc-ion pouch cells [J]. *Nano Letters*, 2025, 25 (27) : 10935-10943.
- [16] SONG M, TAN H, CHAO D L, et al. Recent advances in Zn-ion batteries [J/OL]. *Advanced Functional Materials*, 2018, 28 (41) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/adfm.201802564>.
- [17] BLANC L E, KUNDU D P, NAZAR L F. Scientific challenges for the implementation of Zn-ion batteries [J]. *Joule*, 2020, 4(4): 771-799.
- [18] ZHANG N, CHEN X Y, YU M, et al. Materials chemistry for rechargeable zinc-ion batteries [J]. *Chemical Society Reviews*, 2020, 49(13): 4203-4219.
- [19] CAO L S, LI D, HU E Y, et al. Solvation structure design for aqueous Zn metal batteries[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2020, 142(51): 21404-21409.
- [20] JIA X X, LIU C F, NEALE Z G, et al. Active materials for aqueous zinc ion batteries: Synthesis, crystal structure, morphology, and electrochemistry [J]. *Chemical Reviews*, 2020, 120(15): 7795-7866.
- [21] CAO Z Y, ZHU X D, XU D X, et al. Eliminating Zn dendrites by commercial cyanoacrylate adhesive for zinc ion battery[J]. *Energy Storage Materials*, 2021, 36: 132-138.
- [22] LIU Y F, LIU S D, XIE X S, et al. A functionalized separator enables dendrite-free Zn anode via metal-polydopamine coordination chemistry [J/OL]. *InfoMat*, 2023, 5 (3) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/inf2.12374>.
- [23] QIU H Y, DU X F, ZHAO J W, et al. Zinc anode-compatible *in-situ* solid electrolyte interphase via cation solvation modulation [J/OL]. *Nature Communications*, 2019, 10[2026-01-16]. <https://doi.org/10.1038/s41467-019-13436-3>.
- [24] LOMBARDO T, DUQUESNOY M, EL-BOUYSIDY H, et al. Artificial intelligence applied to battery research: Hype or reality? [J]. *Chemical Reviews*, 2022, 122(12) : 10899-10969.
- [25] URBAN A, SEO D H, CEDER G. Computational understanding of Li-ion batteries[J/OL]. *npj Computational Materials*, 2016, 2 [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1038/npjcompumats.2016.2>.
- [26] LUO H L, GUAN Z X, WU C H, et al. High performance all-solid-state lithium batteries: Interface regulation mechanism[J/OL]. *Advanced Functional Materials*, 2024, 34 (42) [2026-1-16]. <https://doi.org/10.1002/adfm.202407007>.
- [27] TRASATTI S. Work function, electronegativity, and electrochemical behaviour of metals III. Electrolytic hydrogen evolution in acid solutions [J]. *Journal of Electroanalytical Chemistry and Interfacial Electrochemistry*, 1972, 39(1): 163-184.
- [28] ZHENG Y, JIAO Y, JARONIEC M, et al. Advancing the electrochemistry of the hydrogen-evolution reaction through combining experiment and theory[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2015, 54(1): 52-65.
- [29] XU J, LI H L, JIN Y, et al. Understanding the electrical mechanisms in aqueous zinc metal batteries: From electrostatic interactions to electric field regulation[J/OL]. *Advanced Materials*, 2024, 36 (3) [2026-1-16]. <https://doi.org/10.1002/adma.202309726>.
- [30] YANG J Z, YIN B S, SUN Y, et al. Zinc anode for mild aqueous zinc-ion batteries: Challenges, strategies, and perspectives [J/OL]. *Nano-Micro Letters*, 2022, 14 (1) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1007/s40820-021-00782-5>.
- [31] HAO J N, YUAN L B, YE C, et al. Boosting zinc electrode reversibility in aqueous electrolytes by using low-cost antisolvents [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2021, 60(13): 7366-7375.
- [32] YANG H J, CHANG Z, QIAO Y, et al. Constructing a super-saturated electrolyte front surface for stable rechargeable aqueous zinc batteries[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2020, 59(24): 9377-9381.
- [33] BAYAGUUD A, LUO X, FU Y P, et al. Cationic surfactant-type electrolyte additive enables three-dimensional dendrite-free zinc anode for stable zinc-ion batteries [J]. *ACS Energy Letters*, 2020, 5 (9) : 3012-3020.
- [34] LIANG P C, YI J, LIU X Y, et al. Highly reversible Zn anode enabled by controllable formation of nucleation sites for Zn-based batteries [J/OL]. *Advanced Functional Materials*, 2020, 30(13) [2026-01-16]. <https://doi.org/>

- 10.1002/adfm.201908528.
- [35] 来森, 许铭冬, 王佳帆, 等. 水系锌离子电池三维负极材料研究进展[J]. 物理化学进展, 2023(2): 27-36.
- LAI S, XU M D, WANG J F, et al. Research progress of three-dimensional anode materials for aqueous zinc ion batteries [J]. *Journal of Advances in Physical Chemistry*, 2023(2): 27-36. (Ch).
- [36] CHU Y Z, REN L X, HU Z L, et al. An in-depth understanding of improvement strategies and corresponding characterizations towards Zn anode in aqueous Zn-ions batteries [J]. *Green Energy & Environment*, 2023, 8(4): 1006-1042.
- [37] QI B W, HUANG M, SONG M, et al. Alloying design strategies for high-performance Zn anodes in aqueous zinc-ion batteries [J/OL]. *Materials*, 2025, 18(13) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.3390/ma18132997>.
- [38] ZHAO R H, FENG Z Y, KUANG R Q, et al. UV-polymerized zincophilic ion-enhanced interfacial layer with high ion transference number for ultrastable Zn metal anodes [J/OL]. *Carbon Neutralization*, 2025, 4(2) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/cnl2.194>.
- [39] LI Y, WANG Z H, CAI Y, et al. Designing advanced aqueous zinc-ion batteries: principles, strategies, and perspectives [J]. *Energy & Environmental Materials*, 2022, 5(3): 823-851.
- [40] SU S Y, XU Y, WANG Y, et al. Holey nickel nanotube reticular network scaffold for high-performance flexible rechargeable Zn/MnO₂ batteries [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 370: 330-336.
- [41] SONG B X, WANG X Y, GAO H, et al. Uniform zinc-ion deposition regulated by thin sulfonated poly (ether ketone) layer for Stabilizing Zn anodes [J/OL]. *Nanotechnology*, 2024, 35(2) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1088/1361-6528/ad0245>.
- [42] MENG H, RAN Q, DAI T Y, et al. Surface-alloyed nanoporous zinc as reversible and stable anodes for high-performance aqueous zinc-ion battery [J/OL]. *Nano-Micro Letters*, 2022, 14(1) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1007/s40820-022-00867-9>.
- [43] ZENG Y X, ZHANG X Y, QIN R F, et al. Dendrite-free zinc deposition induced by multifunctional CNT frameworks for stable flexible Zn-ion batteries [J/OL]. *Advanced Materials*, 2019, 31(36) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/adma.201903675>.
- [44] DUAN M H, YANG Z H, HOU Q Q, et al. Artificial protective layers of zinc metal anodes for reversible aqueous zinc ion batteries [J/OL]. *Current Opinion in Electrochemistry*, 2024, 48 [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1016/j.coelec.2024.101594>.
- [45] CHEN M J, TIAN S Y, SONG Y X, et al. A corrosion-resistant zinc-chromium alloy layer for highly reversible aqueous zinc-ion batteries [J]. *Journal of Central South University*, 2024, 31(12): 4549-4559.
- [46] YAN Y H, JIAO Y C, WU P Y. Realizing high performance four-electron zinc-iodine batteries with acidic eutectic electrolyte [J/OL]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2025, 64(46) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/anie.202515633>.
- [47] WEI J, ZHANG P B, SUN J J, et al. Advanced electrolytes for high-performance aqueous zinc-ion batteries [J]. *Chemical Society Reviews*, 2024, 53(20): 10335-10369.
- [48] WANG L, YAN S, QUILTY C D, et al. Achieving stable molybdenum oxide cathodes for aqueous zinc-ion batteries in water-in-salt electrolyte [J/OL]. *Advanced Materials Interfaces*, 2021, 8(9) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/admi.202002080>.
- [49] ZHANG N, CHENG F Y, LIU Y C, et al. Cation-deficient spinel ZnMn₂O₄ cathode in Zn(CF₃SO₃)₂ electrolyte for rechargeable aqueous Zn-ion battery [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2016, 138(39): 12894-12901.
- [50] LI H Y, ZHU Y, SUN X Y, et al. Lowering water activity via solvent hydration competition in electrolyte for stable Zn metal batteries [J/OL]. *Nano Energy*, 2025, 143 [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2025.111302>.
- [51] GOU Q Z, LUO H R, ZHANG Q, et al. Electrolyte regulation of bio-inspired zincophilic additive toward high-performance dendrite-free aqueous zinc-ion batteries [J/OL]. *Small*, 2023, 19(10) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/smll.202207502>.
- [52] WAN J D, WANG R, LIU Z X, et al. A double-functional additive containing nucleophilic groups for high-performance Zn-ion batteries [J]. *ACS Nano*, 2023, 17(2): 1610-1621.
- [53] KHAN Z, KUMAR D, CRISPIN X. Does water-in-salt electrolyte subdue issues of Zn batteries? [J/OL]. *Advanced Materials*, 2023, 35(36) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/adma.202300369>.
- [54] CHEN R W, ZHANG W, HUANG Q B, et al. Trace amounts of triple-functional additives enable reversible aqueous zinc-ion batteries from a comprehensive perspective [J/OL]. *Nano-Micro Letters*, 2023, 15(1) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1007/s40820-023-01050-4>.
- [55] ZONG Y, HE H W, WANG Y Z, et al. Functionalized separator strategies toward advanced aqueous zinc-ion batteries [J/OL]. *Advanced Energy Materials*, 2023, 13(20) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/aenm.202300403>.
- [56] CHEN J W, BAI Z M, YU X X, et al. Separator of polyacrylonitrile modified with Prussian blue analogs for high-efficiency aqueous zinc-ion batteries [J]. *Journal of Materials Chemistry A*, 2024, 12(25): 15486-15493.
- [57] CHENG L K, LI W Z, LI M R, et al. Zwitterion modified polyacrylonitrile fiber separator for long-life zinc-ion batteries [J/OL]. *Advanced Functional Materials*, 2024, 34(48) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/adfm.202408863>.
- [58] LÜ S J, SU M Y, LI Z, et al. Hydrophilic-zincophobic separator enabling by crystal structure regulation toward

- stabilized Zn metal anode [J/OL]. *Advanced Functional Materials*, 2024, 34(27) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/adfm.202315910>.
- [59] LI Z G, WU X H, YU X Y, et al. Long-life aqueous Zn-I (2) battery enabled by a low-cost multifunctional zeolite membrane separator[J]. *Nano Letters*, 2022, 22(6): 2538-2546.
- [60] GU W, WU K, HUANG J W, et al. The role and mechanism of separators in aqueous zinc metal batteries: a critical review [J/OL]. *Advanced Energy Materials*, 2025, 15(39)[2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/aenm.202502652>.
- [61] ZHANG H Y, NING F H, GUO Y M, et al. Unraveling the mechanisms of aqueous zinc ion batteries *via* first-principles calculations[J]. *ACS Energy Letters*, 2024, 9(10): 4761-4784.
- [62] BEDROV D, PIQUEMAL J P, BORODIN O, et al. Molecular dynamics simulations of ionic liquids and electrolytes using polarizable force fields [J]. *Chemical Reviews*, 2019, 119(13): 7940-7995.
- [63] BUTLER K T, DAVIES D W, CARTWRIGHT H, et al. Machine learning for molecular and materials science [J]. *Nature*, 2018, 559(7715): 547-555.
- [64] LUO H R, JIANG J Z, ARRAMEL, et al. Working mechanism of MXene as the anode protection layer of aqueous zinc-ion batteries [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2024, 654: 289-299.
- [65] TIAN X M, ZHAO Q, ZHOU M M, et al. Synergy of dendrites-impeded atomic clusters dissociation and side reactions suppressed inert interface protection for ultrastable Zn anode [J/OL]. *Advanced Materials*, 2024, 36(19) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/adma.20240023>.
- [66] YI C, JIAO L, WANG J Z, et al. Multi-scale functionally designed ZnWO₄ artificial interphase for ultra-stable aqueous Zn metal anodes under high current rates[J/OL]. *Advanced Functional Materials*, 2024, 34(45)[2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/adfm.202404579>.
- [67] ZHANG S D, CHEN J S, CHEN W G, et al. Regulating water molecules *via* bioinspired covalent organic framework membranes for Zn metal anodes [J/OL]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2025, 64(14)[2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/anie.202424184>.
- [68] ZHANG Q, MA Y L, LU Y, et al. Designing anion-type water-free Zn²⁺ solvation structure for robust Zn metal anode [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2021, 60(43): 23357-23364.
- [69] CAO L S, LI D, POLLARD T, et al. Fluorinated interphase enables reversible aqueous zinc battery chemistries [J]. *Nature Nanotechnology*, 2021, 16(8): 902-910.
- [70] WANG K X, HE Y T, YUAN R D, et al. A bioimmune mechanism-inspired targeted elimination mechanism on the anode interface for zinc-iodine batteries [J]. *Chemical Science*, 2025, 16(17): 7227-7238.
- [71] ZHANG S D, GOU Q Z, CHEN W G, et al. Co-regulating solvation structure and hydrogen bond network *via* bio-inspired additive for highly reversible zinc anode[J/OL]. *Advanced Science*, 2024, 11(35) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/advs.202404968>.
- [72] DENG J B, XUE G F, LI C, et al. Accelerating ion desolvation *via* bioinspired ion channel design in nonconcentrated aqueous electrolytes [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2025, 147(7): 5943-5954.
- [73] MIAO L C, WANG R H, DI S L, et al. Aqueous electrolytes with hydrophobic organic cosolvents for stabilizing zinc metal anodes[J]. *ACS Nano*, 2022, 16(6): 9667-9678.
- [74] RACCUGLIA P, ELBERT K C, ADLER P D F, et al. Machine-learning-assisted materials discovery using failed experiments[J]. *Nature*, 2016, 533(7601): 73-76.
- [75] SENDEK A D, YANG Q, CUBUK E D, et al. Holistic computational structure screening of more than 12 000 candidates for solid lithium-ion conductor materials [J]. *Energy & Environmental Science*, 2017, 10(1): 306-320.
- [76] LI Q, ZHANG Y F, FENG W C, et al. Manganese-based metal-organic coordination for aqueous zinc-ion batteries with varying mechanical adaptability and machine learning-assisted performance decoding [J/OL]. *Advanced Materials*, 2025, 37(35) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/adma.202507951>.
- [77] KEITH J A, VASSILEV-GALINDO V, CHENG B Q, et al. Combining machine learning and computational chemistry for predictive insights into chemical systems[J]. *Chemical Reviews*, 2021, 121(16): 9816-9872.
- [78] DONG J B, ZHOU G L, DING W H, et al. Machine learning-assisted benign transformation of three zinc states in zinc ion batteries [J]. *Energy & Environmental Science*, 2025, 18(10): 4872-4882.
- [79] ZHAO Z R, XIA J C, WU S, et al. Insights into dendritic growth mechanisms in batteries: a combined machine learning and computational study[DB/OL]. (2025-03-02) [2026-01-16]. <https://arxiv.org/abs/2503.00836>
- [80] LUO H R, GOU Q Z, ZHENG Y J, et al. Machine learning-assisted high-donor-number electrolyte additive screening toward construction of dendrite-free aqueous zinc-ion batteries[J]. *ACS Nano*, 2025, 19(2): 2427-2443.
- [81] ZHU R J, LI Z C, LI M, et al. Machine-learning-assisted development of gel polymer electrolytes for protecting Zn metal anodes from the corrosion of water molecules[J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2024, 15(19): 5191-5201.
- [82] SHANG Y, KUNDI V, PAL I, et al. Highly potent and low-volume concentration additives for durable aqueous zinc batteries: Machine learning-enabled performance rationalization [J/OL]. *Advanced Materials*, 2024, 36(9) [2026-01-16]. <https://doi.org/10.1002/adma.202309212>.

Optimization of the anode–electrolyte interface in aqueous zinc–ion batteries and its virtual development

ZHENG Yujie¹, WU Guo¹, WANG Lei¹, MEI Huaping¹, GOU Qianzhi², LI Meng¹

(1. National Innovation Center for Industry–Education Integration of Energy Storage, MOE Key Laboratory of Low–grade Energy Utilization Technologies and Systems, CQU–NUS Renewable Energy Materials & Devices Joint Laboratory, School of Energy & Power Engineering, Chongqing University, Chongqing 400044, China;

2. International Joint Laboratory on Low Carbon Built Environment, Ministry of Education of China, School of Building Services Science and Engineering, Xi’an University of Architecture and Technology, Xi’an 710055, China)

Abstract: Aqueous Zinc–Ion Batteries (AZIBs) are promising post–lithium–ion energy storage systems due to high safety, low cost, and environmental friendliness. However, negative electrode interface issues (dendrite growth, hydrogen evolution, corrosion) severely limit their calendar life and energy density, demanding rational interface optimization strategies. Relevant reviews on AZIBs interface optimization are scarce. Thus, focusing on AZIBs interface problems and optimization paths, we summarize advances in negative electrode regulation, electrolyte and separator optimization. As traditional trial–and–error experiments barely reveal microscopic mechanisms, it explores the role of virtual technologies (density functional theory, molecular dynamics, machine learning) in clarifying mechanisms, accelerating screening, and optimizing performance. In conclusion, the interface optimization–virtual development paradigm is crucial for AZIBs application. Multi–scale simulation–experiment synergy is highlighted in solving interface issues and improving battery performance, guiding next–generation high–performance energy storage device design.

Key words: aqueous zinc–ion batteries; interface optimization; virtual development; combination of experiment and theory

附录 正极储存机制及充放电过程说明(图 S1)与界面及常见的界面问题示意图(图 S2)

