doi: 10.3969/j.issn.1005-7854.2026.02.018
引用格式：唐兆第，王炯辉. 用于高性能锂离子电池负极的高容量长循环碳包覆SiO负极材料[J]. 矿冶，2026，35(2)：320-328.
TANG Zhaodi, WANG Jionghui. High-capacity and long-cycle carbon-coated SiO anode materials for high-performance lithium-ion batteries[J]. Mining and Metallurgy, 2026, 35(2): 320-328.

用于高性能锂离子电池负极的高容量长循环碳包覆SiO负极材料

唐兆第[1,2] 王炯辉[1]
（1. 五矿勘查开发有限公司，北京 100010；
2. 中国五矿集团（黑龙江）石墨产业有限公司，黑龙江 鹤岗 154101）

摘 要：锂离子电池因其高效性和可持续性，已成为新能源产业重要的储能方式。尽管优势显著，但是常用石墨负极的理论比容量仅为372 mAh·g^{-1}。具有更高理论比容量的氧化亚硅（SiO）已成为一种极具前景的候选材料。然而，其较差的导电性和显著的体积膨胀等问题阻碍了其实际应用。本研究通过化学气相沉积（CVD）技术对SiO进行表面碳包覆改性，有效解决了上述问题。通过优化关键工艺参数，该策略显著提升了SiO材料的电化学性能。分析表明，碳包覆SiO表现出优异的电化学性能：首次充放电比容量分别达到1 437.1/1 894.2 mAh·g^{-1}，首次库仑效率为75.87%，并且在130次循环后仍能保持1 096.2 mAh·g^{-1}的稳定可逆容量。本研究不仅证明了CVD技术在改善SiO基负极材料方面的有效性，还为工艺参数的优化及其对材料性能的影响提供了深入的见解。这些发现为锂离子电池技术的进一步发展提供了指导，突显了SiO作为满足未来能源领域需求的关键材料的潜力。

关键词：锂离子电池；SiO负极；碳包覆；化学气相沉积；长循环
中图分类号：TQ15；TM912；O646 **文献标志码：**A **文章编号：**1005-7854（2026）02-0320-09

High-capacity and long-cycle carbon-coated SiO anode materials for high-performance lithium-ion batteries

TANG Zhaodi[1,2] WANG Jionghui[1]
(1. Minmetals Exploration and Development Co., Ltd., Beijing 100010, China;
2. China Minmetals (Heilongjiang) Graphite Industry Co., Ltd., Hegang 154101, Heilongjiang, China)

Abstract: Lithium-ion batteries have become an important energy storage method in the new energy industry due to their high efficiency and sustainability. Despite their advantages, the theoretical specific capacity of the commonly used graphite anode is only 372 mAh·g^{-1}. Silicon oxide (SiO) with a higher theoretical specific capacity has emerged as a promising candidate. However, challenges such as poor electrical conductivity and significant volume expansion hinder its practical application. This study addresses these challenges by applying surface carbon coating modification by chemical vapor deposition (CVD). This method significantly enhances the electrochemical properties of SiO material by optimizing key process parameters. Detailed analysis reveals that the carbon-coated SiO exhibits remarkable electrochemical performance, achieving a specific charge-discharge capacity of 1 437.1/1 894.2 mAh·g^{-1}, an initial coulombic efficiency of 75.87%, and a stable reversible capacity of 1 096.2 mAh·g^{-1} over 130 cycles. This study not only demonstrates the effectiveness of CVD in improving SiO-based anodes but also

收稿日期：2025-08-08 **修回日期：**2025-09-16 **录用日期：**2025-10-24
基金项目：黑龙江省重点研发计划项目(2023ZX04A01)
第一作者：唐兆第，博士，工程师，主要从事锂离子电池材料的研究开发。E-mail：zhaoditang616@163.com
通信作者：王炯辉，博士，研究员；E-mail：wangjh@minmetals.com
©Mining and Metallurgy Editorial Department 2026. This is an open access article under the CC-BY-NC-ND 4.0 License.

offers comprehensive insights into the optimization of process parameters and their impact on material properties. These findings pave the way for further advancements in lithium-ion battery technology, highlighting the potential of SiO as a key material in meeting the future demands of the energy sector.

Key words: lithium-ion battery; SiO anode; carbon coating; chemical vapor deposition; long-cycle

为实现“碳达峰、碳中和”战略目标，发展清洁新能源的需求日益迫切。锂离子电池因其绿色环保特性，已成为新能源体系中的关键组成部分。然而，当前广泛使用的石墨负极受限于372 mAh·g^{-1}的理论比容量，难以满足未来高能量密度储能器件的需求[1,2]。因此，开发新型高容量负极材料以提升锂离子电池的能量密度，成为当前研究的重要方向。

在众多候选材料中，SiO因其高理论比容量而成为研究焦点[3,4]。但SiO材料本身存在导电性差和充放电过程中体积膨胀显著等问题。作为硅基材料之一，SiO在嵌锂过程中会发生约200%的体积变化，这种剧烈的膨胀效应易导致活性物质粉化并从集流体脱落，进而造成电极结构破坏和循环稳定性衰退[5,6]。此外，其独特的嵌锂机制会生成不可逆锂化产物，致使首次库仑效率偏低[7,8]。这些固有缺陷严重制约了SiO材料的商业化应用进程。

针对上述问题，本研究基于现有关于SiO体积膨胀与导电性优化的研究基础，以乙炔为碳源，采用化学气相沉积法在气相环境中于SiO颗粒表面构建碳包覆层，制备具有核壳结构、良好机械强度的C@SiO复合材料，以约束SiO在嵌锂过程中的体积膨胀，避免因反复体积变化导致的SEI膜破裂和活性物质剥落问题。同时，由乙炔裂解生成的乙炔黑作为高性能导电剂，其均匀包覆能够显著改善SiO的本征导电性，进而提升材料的倍率性能。此外，该碳层还能阻隔SiO与电解液的直接接触，抑制副反应的发生，有望提高材料的库仑效率和循环稳定性。

1 试验

1.1 C@SiO 复合材料的制备

为制备C@SiO复合材料，本研究以商业SiO为原料，乙炔(C_2H_2)为碳源，采用化学气相沉积法在其表面构建碳包覆层。碳包覆SiO制备示意图如图1所示，具体步骤为：将1 kg SiO原料置于旋转式化学气相沉积炉中，在氩气气氛下以5 ℃·min^{-1}的速率升温至目标反应温度(700、800或900 ℃)。待温度稳定后，以5 L·min^{-1}的流速通入乙炔气体，在持续炉体旋转条件下反应5 h，使乙炔充分裂解并在SiO表面沉积。

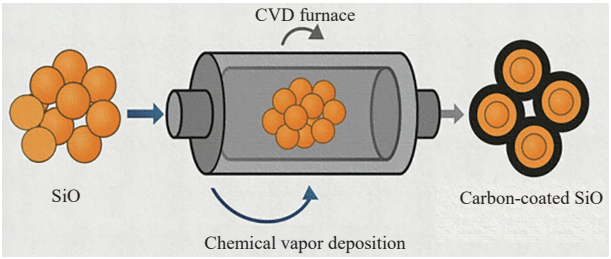


图1 碳包覆SiO制备示意图

Fig. 1 Preparation schematic diagram of carbon-coated SiO

反应结束后，停止通入乙炔，在氩气保护下自然冷却至室温，即可得到具有核壳结构的C@SiO负极材料。

1.2 电极制备与电池组装

将所制备的C@SiO活性材料、导电剂(Super P：7.5%；CNT：2.5%)和黏结剂(CMC：5%；SBR：5%)按质量比80∶10∶10均匀混合，并加入去离子水调制成浆料。随后，将浆料均匀涂覆于铜箔集流体上，置于80 ℃真空干燥箱中处理12 h，经冲片后制得直径12 mm的圆片电极。

电池组装在充满氩气的手套箱(H_2O蒸汽的体积浓度小于0.1 ppm，O_2浓度小于0.1 ppm，1 ppm=10^{-6}，下同)中进行，以C@SiO电极为工作电极，金属锂片为对电极/参比电极，Celgard 2400多孔聚丙烯膜为隔膜，电解液为1 M $LiPF_6$的碳酸酯类混合溶剂(EC/DMC/DEC，体积比1∶1∶1)，其中添加5%氟代碳酸乙烯酯(FEC)。采用CR2032型扣式电池壳完成组装。所有电池均在恒流充放电测试系统上进行电化学性能评估，电压窗口为0.005~1.5 V(vs. Li$^+$/Li)，测试倍率为1 C。

1.3 材料表征

采用场发射扫描电子显微镜(SEM，Hitachi SU8010，日本)和透射电子显微镜(TEM，JEOL JEM-2200FS，日本)观察材料的微观形貌与包覆层结构。结合扫描电镜与能量色散X射线光谱(SEM-EDS)对样品进行了元素面分布分析。利用X射线衍射仪(XRD，Bruker D8-Advance，德国)分析材料的晶体结构。通过X射线光电子能谱仪(XPS，Thermo Scientific K-Alpha+，英国)表征样品表面元素组成与化学状态，所有结合能以C 1s峰(284.8 eV)进行校准。

2 结果与讨论

2.1 C@SiO 复合材料的微观形貌与结构

实现高质量碳包覆的关键步骤在于乙炔在设定高温下的有效热裂解。乙炔分子在高温下发生C—H键和C≡C键断裂，生成高活性的碳自由基或小分子碎片，这些活性物质在SiO颗粒表面吸附、迁移、成核并最终生长形成连续、均匀的碳层。因此，精确控制裂解温度是调控碳层结构（如厚度、致密度、石墨化程度）和最终复合材料性能的核心参数。原料SiO以及经不同温度CVD处理后所得C@SiO样品的SEM分析图像如图2所示。

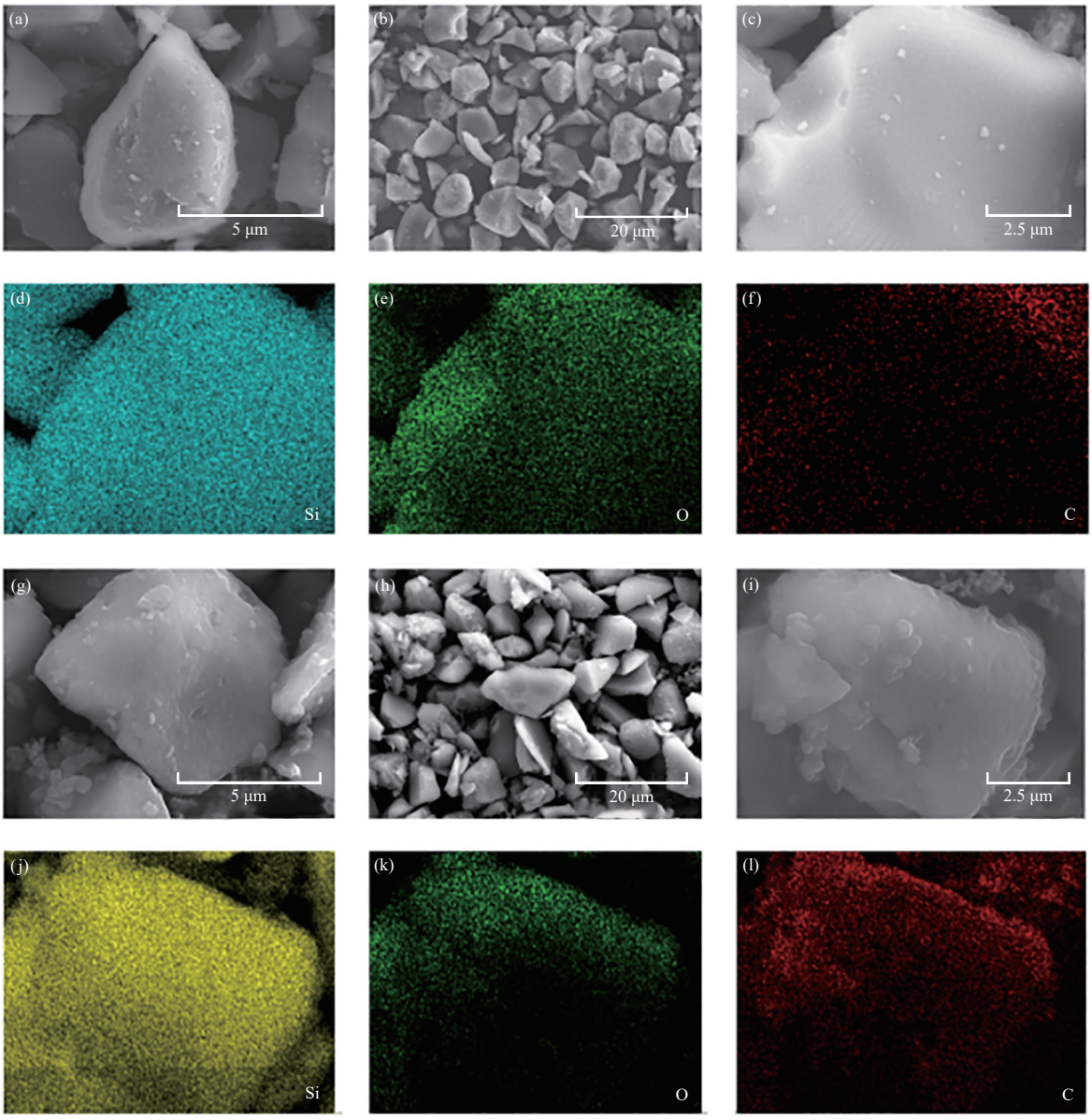


图2 SiO原料的(a–c)SEM图像和(d–f)EDS元素分布图像；CVD处理后SiO的(g–i)SEM图像和(j–l)EDS元素分布图像

Fig. 2 (a–c) SEM images and (d–f) EDS maps of SiO raw materials; (g–i) SEM images and (j–l) EDS maps of SiO after CVD

从图2可以看出，碳包覆过程并未显著改变SiO基体颗粒的整体尺寸分布与基本形态（如球形或类球形）。然而，包覆后的颗粒表面呈现出更为光滑、均一的特征。这种形貌上的变化可归因于气相沉积形成的无定形碳层对SiO颗粒表面的均匀覆盖，有效填充或掩盖了原始颗粒表面的微观粗糙度和缺陷，使得原本可能存在的棱角或凹陷变得平缓。此外，SEM分析中观察到碳包覆区域具有更高的图像衬度，这源于碳材料与SiO在电子密度上的差异。在二次电子探测模式下，导电性优异的碳层更易于释放二次电子，从而在图像中呈现更明亮的信号，这也间接印证了碳层对材料整体导电性的提升作用。C、O、

Si元素的面扫描结果显示，三种元素在整个观测区域内均呈现高度均匀且重叠性良好的分布特征。经过CVD处理后SiO表面的碳元素含量原子比提升到50.48%，证明了通过CVD技术实现了有效的碳包覆。碳元素的信号在整个颗粒表面及颗粒之间区域均被检测到，且强度分布均匀。这一结果强有力地佐证了CVD能够在SiO颗粒表面实现碳原子的均匀沉积，形成空间分布一致性良好的包覆层。这种均匀性对于确保每个活性颗粒均获得有效的电子传导路径和体积膨胀约束至关重要，是获得高性能、高一致性负极材料的基础。

不同沉积温度下所得样品C@SiO的TEM图像如图3所示。从图3可以观察到，SiO核心（呈现相对较暗的衬度）被一层连续、厚度均匀的浅色（亮衬度）物质所包裹。这种显著的衬度差异直接归因于SiO与碳层对电子束散射能力的差异。图3(a)–(b)（C@SiO-700）、图3(c)–(d)（C@SiO-800）和图3(e)–(f)（C@SiO-900）均证实了碳层的成功包覆，并且包覆层与SiO核心之间形成了清晰的界面。这种均匀、完整的核壳结构对于提升SiO负极的综合性能至关重要：首先，连续致密的碳层可作为物理屏障，有效隔离SiO活性物质与电解液的直接接触，抑制副反应发生；其次，具有良好韧性和一定机械强度的碳壳层能够约束SiO在锂化过程中的巨大体积膨胀（理论值约200%），缓冲由此产生的内应力，从而防止颗粒粉化、活性物质脱离集流体以及固态电解质界面（SEI）膜的反复破裂与再生，这是提升循环稳定性的核心机制。再者，高导电性的碳层如同为SiO颗粒“穿上”了一层导电网络，极大改善了整体材料的电子电导率，促进电荷转移过程[9,10]。

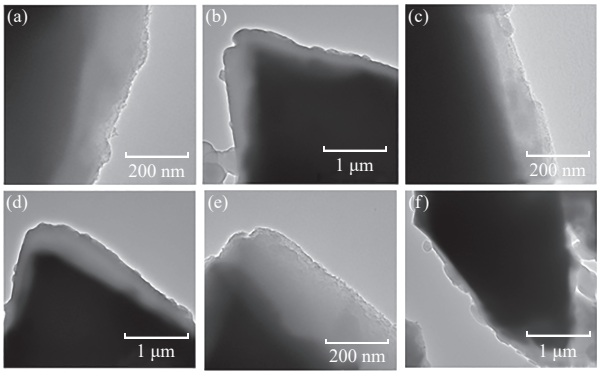


图3 (a–b)C@SiO-700(c–d)C@SiO-800 (e–f)C@SiO-900的TEM图像

Fig. 3 TEM images of (a–b) C@SiO-700 (c–d) C@SiO-800 (e–f) C@SiO-900

原料SiO以及不同温度CVD碳包覆后C@SiO复合材料的XRD图谱如图4所示。从图4可以看出，原料SiO的XRD谱图在2θ为20°~30°处呈现一个典型的宽而弥散的馒头峰，这是非晶态或短程有序结构的显著特征，表明原料SiO材料主要由无定形的SiO_x（x≈1）组成，缺乏长程周期性排列的晶体结构。原料SiO在700、800、900 ℃下经CVD碳包覆处理后，所有C@SiO样品的XRD谱图在20°~30°依然保持相似的宽衍射峰，峰形和位置与原料SiO高度一致，且未出现归属于晶态硅或晶态石英/方石英的尖锐衍射峰。这一关键结果说明：CVD碳包覆过程本身以及本试验所采用的最高温度（900 ℃）并未诱导SiO基体发生显著的晶化转变，材料主体仍保持其有益于锂离子嵌入/脱出的非晶态结构。尽管TEM观察到可能的歧化产物（Si/SiO_2纳米晶），但其含量极低或尺寸极小，未能形成可检测的晶相衍射峰。此外，在C@SiO样品的XRD谱图中，也未观察到位于~26°附近归属于石墨（002）晶面的尖锐衍射峰。这表明由乙炔在700~900 ℃裂解沉积形成的碳层主要为无序度较高的无定形碳，而非结晶良好的石墨碳，这与相对较低的裂解温度条件相符。

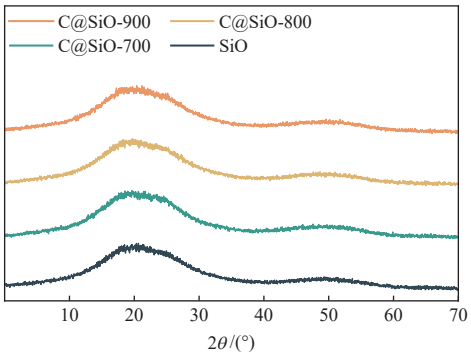


图4 SiO原料及CVD处理后SiO的XRD图谱

Fig. 4 XRD patterns of SiO raw materials and SiO after CVD

原料SiO以及不同温度CVD碳包覆后C@SiO复合材料的拉曼光谱如图5所示。可以看出，所有C@SiO样品（C@SiO-700，800，900）的拉曼光谱均可在517 cm^{-1}附近观察到一个明显的特征峰，该峰对应于硅的晶格振动模式（Si—Si键伸缩振动），证实了高温处理过程中SiO歧化生成了少量晶态Si（尽管XRD未检测到）。更重要的是，在1 350 cm^{-1}和1 590 cm^{-1}附近出现了两个显著的拉曼特征峰，它们分别被认为碳材料的D峰和G峰。对碳材料结构表

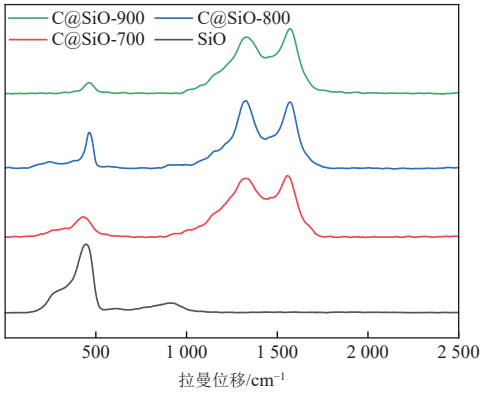


图5　SiO原料及CVD处理后SiO的拉曼光谱

Fig. 5　Raman spectra of SiO raw materials and SiO after CVD

征的一个重要参数是D峰强度(I_D)与G峰强度(I_G)的比值(I_D/I_G)。该比值是评估碳材料无序程度(缺陷密度)和石墨化程度的关键指标：比值越高，通常意味着材料中缺陷越多，石墨化程度越低；反之，则表明结构更有序，石墨化程度更高。计算得到C@SiO-700、C@SiO-800和C@SiO-900样品的I_D/I_G比值分别为0.960 9、1.009 1和0.960 7。这些数值均接近于1或略大于1，显著高于高度有序的热解石墨。这表明在700~900 ℃的CVD条件下形成的碳层具有高度的无序性，主要由富含缺陷的无定形碳构成，其有序畴尺寸较小。这一结果与前述XRD未检测到石墨衍射峰的结论一致，共同证实了碳层的非晶态本质。值得注意的是，I_D/I_G值波动较小，未呈现随温度升高而单调下降(即石墨化程度提高)的明显趋势，这可能与特定温度区间内裂解—沉积动力学的复杂性以及SiO基底的影响有关。尽管如此，适度的石墨化程度对于保证碳层良好的电子导电性仍然是有利的。

为了深入解析C@SiO复合材料表面及近表面区域的元素化学状态、成键环境以及Si/C/O元素间的相互作用，本研究利用XPS进行了高分辨率窄扫描分析，结果如图6所示。全谱确认了样品中存在Si、O、C三种主要元素。对C 1s、O 1s和Si 2p能级谱进行了精细分峰拟合处理，以获取更精确的化学信息。C@SiO样品的C 1s谱可拟合为三个主要贡献峰：结合能位于284.8 eV左右的主峰归属于sp^2/sp^3杂化的C—C/C＝C键(石墨碳或无定形碳中的碳骨架)；位于285.5~286.0 eV的峰归属于C—O键(如羟基、醚键)；

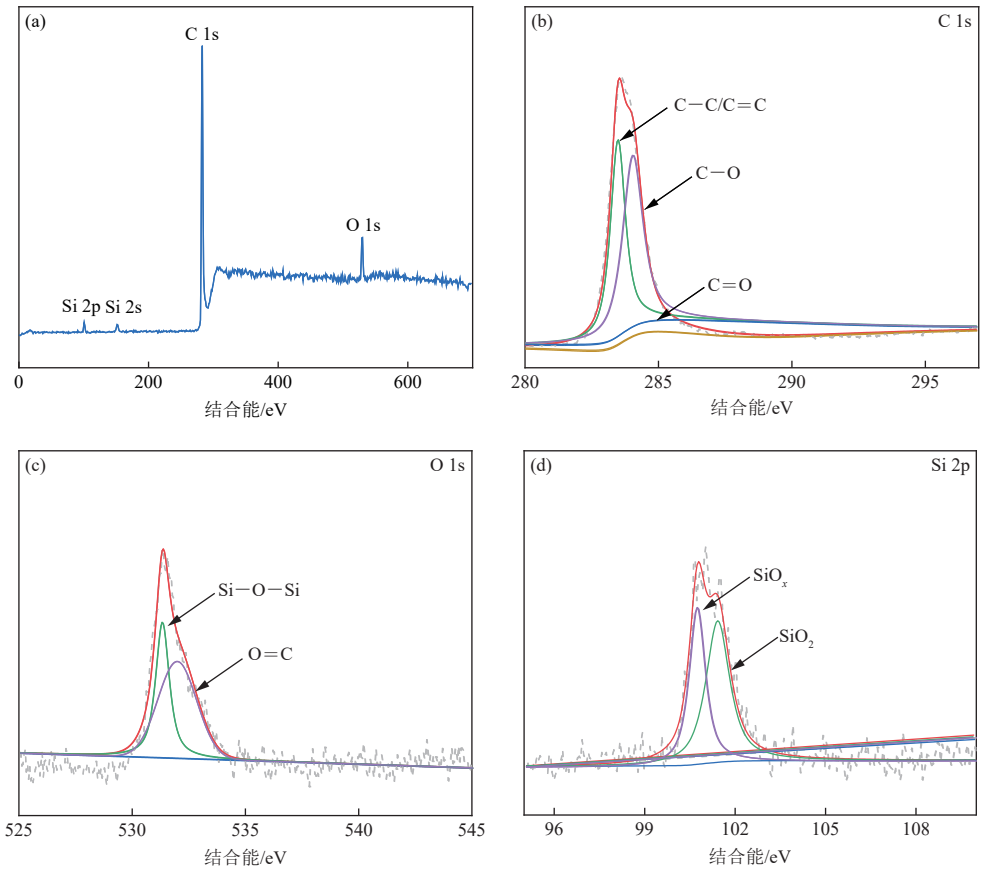


图6　CVD处理后SiO的XPS谱图

Fig. 6　XPS spectra of SiO after CVD

位于288.5~289.0 eV的峰则归属于羰基(C＝O)或羧基(O－C＝O)中的碳。其中，C－C/C＝C峰占主导地位，证实了碳层的主要成分是碳氢裂解形成的碳网络。C－O和C＝O/O－C＝O峰的存在，则表明碳层表面或近表面存在一定程度的氧化(可能源于空气暴露或前驱体不完全裂解)，或者存在SiO基体中的氧向碳层扩散/键合的情况。O 1s谱主要包含两个特征峰：在532.5~533.0 eV的强峰归属于SiO_x(主要是Si－O－Si键)中的晶格氧；在533.5~534.0 eV的峰通常归属于表面吸附氧、羟基(－OH)、或与碳结合的含氧官能团中的氧(C＝O，C－O)。对C@SiO样品的Si2p谱进行拟合，主要可识别出两个双峰组分：在~100.5 eV的组分归属于亚化学计量氧化亚硅(SiO_x，x<2)或低价态硅物种(如Si^+、Si^{2+})；在~103.5 eV的强峰则归属于化学计量二氧化硅(SiO_2)或高价态硅。这与SiO材料本身的组成(通常为SiO与SiO_2的混合体)以及CVD高温处理可能发生的歧化反应(生成更多SiO_2和Si)的推论相符。未观察到明显的对应于单质硅的强峰，再次说明歧化生成的晶态Si含量较低或主要存在于体相内部。XPS分析综合表明：1)碳包覆层主要成分为含少量氧官能团的无定形碳；2)SiO基体以SiO_2和SiO_x物种为主；3)在Si－C－O界面处可能存在一定程度的化学相互作用(如C－O键)，但未形成大量Si－C键。碳层的存在及其化学状态对于界面稳定性、电荷传输和电化学性能具有重要影响。

2.2 沉积温度对 C@SiO 材料电化学性能的影响

将原料SiO以及在不同温度(700、800、900 ℃)下制备的C@SiO材料制成纽扣电池(锂金属为对电极)，在恒电流条件下进行充放电测试。原料SiO以及三种C@SiO样品(C@SiO-700，C@SiO-800，C@SiO-900)的首圈恒电流充放电曲线如图7(a)所示。原料SiO的首次放电比容量高达2 457.7 mAh·g^{-1}，首次充电比容量为1 608.4 mAh·g^{-1}，计算得到的首次库仑效率仅为65.44%。不可逆容量损失主要源于：1)在低电位下(<0.8 V)电解液在SiO表面反应形成厚且不稳定的SEI膜，消耗大量Li^+和电解液；2)SiO独特的嵌锂机制(如生成不可逆的锂硅酸盐(Li_4SiO_4，$Li_2Si_2O_5$等)和Li_2O)导致部分锂离子无法脱出；3)巨大的体积膨胀引发颗粒开裂、粉化，暴露出新的活性表面，导致SEI膜持续生长增厚。所有碳包覆样品均展现出显著改善的首圈性能，C@SiO-700、C@SiO-800和C@SiO-900的首次充放电比容量分别为1 590.8/2 155.0、1 521.6/2 046.5、1 437.1/1 894.2 mAh·g^{-1}。与原始SiO相比，C@SiO材料的首次放电容量有所降低(如C@SiO-900比原始SiO低约563.5 mAh·g^{-1})。这主要源于：1)非活性碳包覆层的引入增加了材料的整体质量，导致基于复合材料总质量计算的比容量下降(活性物质SiO的比例减少)；2)致密碳层在初始嵌锂阶段可能在一定程度上限制了Li^+向SiO核心的快速扩散(动力学壁垒)。然而，首次充电容量和首效均得到显著提升。C@SiO-900的首效达到75.87%，比原始SiO提高了10个百分点以上。这种提升主要归因于碳包覆层的多重积极作用：均匀致密的碳层作为物理屏障，显著减少了SiO活性物质与电解液的直接接触面积，从而有效抑制了电解液在首圈嵌锂过程中的剧烈副反应和过度SEI膜形成，大幅降低了Li^+和活性物质的不可逆消耗。由高导电性无定形碳构成的包覆层，如同在SiO颗粒表面构建了高效的电子传输通道，极大改善了电极整体的电子导电性。这不仅提升了材料

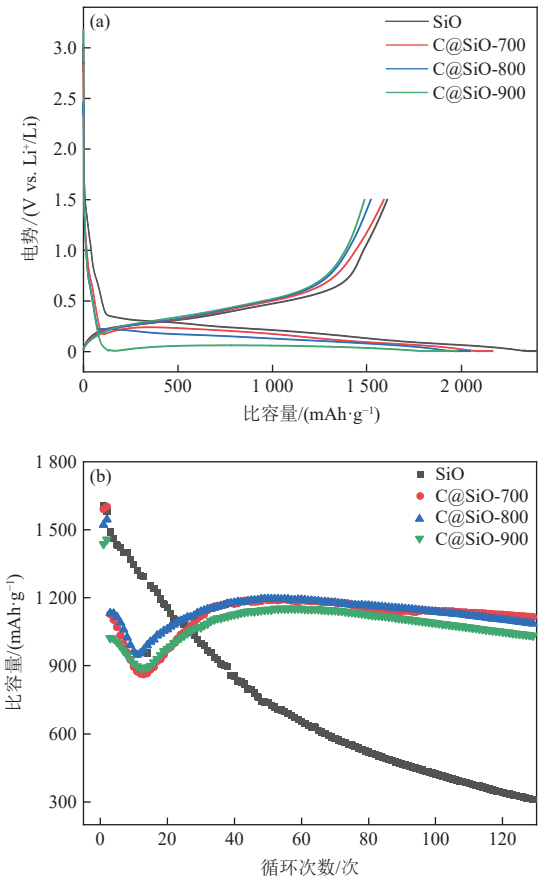


图7 (a) SiO原料及CVD处理后SiO的首次充放电曲线和(b)循环性能

Fig. 7 (a) First charge and discharge curve and (b) cycle performance of SiO raw materials and SiO after CVD

的倍率性能，也促进了嵌锂/脱锂反应的均匀进行，减少了局部极化导致的额外副反应。碳层表面相较于裸露的SiO表面，其反应活性通常更低且更均匀。这有利于在碳层表面形成一层更薄、更致密、导电性更好且更稳定的SEI膜，减少了后续循环中SEI膜的持续生长和Li^+消耗[11-13]。CVD过程中的高温热处理促进了SiO的预歧化（$4SiO \rightarrow Si+2SiO_2$）。生成的纳米晶Si具有更高的理论比容量和相对更好的反应可逆性，而惰性的SiO_2则有助于稳定结构。这种原位生成的Si/SiO_2混合结构通常比原始非晶SiO_x具有更高的首效和循环稳定性。值得注意的是，随着CVD沉积温度从700 ℃升高到900 ℃，C@SiO材料的首次放电容量呈现下降趋势（2 155.0→2 046.5→1 894.2 $mAh \cdot g^{-1}$），但首效却逐步提高（73.82%→74.36%→75.87%）。这是由于：温度升高通常有利于乙炔更充分裂解和碳层更致密化，从而更有效地隔离电解液、减少副反应（提升首效）。但同时会歧化生成非活性物质SiO_2（尤其是在900 ℃），以及更厚或更致密的碳层可能会略微增加Li^+扩散阻力，并且碳层质量占比可能也略有增加，共同导致了首次放电容量的进一步降低[10,14]。

从原料SiO与三种C@SiO材料在1 C倍率下循环的放电容量保持情况（图7(b)）可以看出，原始SiO其循环衰减极为迅速，首次放电容量虽高（2 457.7 $mAh \cdot g^{-1}$），但在前几十次循环内即发生断崖式下跌。经过130次循环后，其放电容量已急剧衰减至仅约300 $mAh \cdot g^{-1}$，容量保持率低至约19.3%。这种衰减源于其固有缺陷：巨大的体积效应导致颗粒反复粉化、脱离集流体；不断破裂再生的SEI膜持续消耗Li^+和电解液；导电性差加剧极化。所有碳包覆样品均展现出循环稳定性提升，碳包覆层提升循环稳定性的核心机制在于：1）包覆在SiO颗粒外部的、具有一定强度和韧性的无定形碳层，在SiO嵌锂发生体积膨胀时（>200%）提供了至关重要的机械约束力。这种约束如同一个“弹性笼子”，有效缓冲了巨大的内应力，显著抑制了颗粒的微裂纹萌生、扩展以及最终的粉化破碎[15,16]。保持颗粒的结构完整性是维持电接触和避免活性物质损失的基础。2）如前所述，碳层减少了与电解液的直接接触，并在其表面形成了更稳定的SEI膜。更重要的是，碳层约束了体积变化，防止了SiO颗粒反复膨胀收缩导致的SEI膜机械破裂。稳定的SEI膜避免了持续的副反应和Li^+消耗，是长循环寿命的关键。3）即使基体发生一定体积变化，包裹颗粒的导电碳层也能维持颗粒内部以及颗粒与导电剂/集流体之间的电子传导通路，防止因颗粒粉化或接触不良导致的电极失效。4）CVD高温过程诱导的原位预歧化（生成Si/SiO_2），可能形成更有利于缓解应力的微观结构（如分散的Si纳米晶镶嵌在SiO_2基质中）[17,18]。

裂解温度的影响在循环性能上也得到体现：温度较低时乙炔裂解可能不够充分（热力学和动力学限制），导致形成的碳层连续性、致密性或均匀性不足，其机械强度和隔离效果相对较差，对体积膨胀的约束和副反应的抑制不够彻底，因此循环稳定性提升幅度相对有限。温度较高时，乙炔裂解充分，有利于形成更均匀、致密且结合良好的碳层，提供机械约束和隔离保护。虽然其首放容量因前述原因略低于其他C@SiO样品，但其在长循环中表现出的容量保持能力较强。值得注意的是，过高的温度（如接近或超过900 ℃）也需警惕潜在风险：1）如前所述，在反应器进料区如果温度也达到乙炔裂解温度，可能导致部分碳在进入主反应区前就沉积在反应器壁或进料口附近的颗粒上，造成反应区核心内颗粒的包覆不均匀；2）可能加剧SiO的歧化反应，改变活性物质组成；3）可能导致碳层结构变化（如sp^2簇增大，向类石墨烯转变，I_D/I_G可能降低，但本研究中变化不明显）或增加能耗。本研究中C@SiO-900表现最佳，说明在该实验系统下，900 ℃仍是可行且有效的优化温度。

将制备得到的氧化亚硅负极与市售的碳包覆SiO基负极材料进行了对比，如表1所示。对比可以发现，本研究通过优化CVD工艺（900 ℃）所获得的C@SiO-900材料在首次库仑效率方面表现突出，高的首效直接源于致密碳层对副反应的有效抑制。此外，在长循环稳定性方面，C@SiO-900在1C的电流密度下循环130次后，仍能保持1 096.2 $mAh \cdot g^{-1}$的可逆容量，其容量保持能力和绝对容量值均展现出显著优势。本研究采用的方法在平衡高首效、高可逆容量和优异循环稳定性方面展现出良好的综合性能，

表1 C@SiO-900材料与市售产品性能对比

Table 1 Performance comparison of C@SiO-900 material and commercial products

材料	首次放电比容量/（$mAh \cdot g^{-1}$）	首次充电比容量/（$mAh \cdot g^{-1}$）	首效	循环性能/（$mAh \cdot g^{-1}$）(1 C，130次后)
C@SiO-900	1 894.2	1 437.1	75.87	1 096.2
市售产品A	2 023.8	1 523.3	75.27	1 033.5
市售产品B	2 223.3	1 638.4	73.69	1 023.7

凸显了优化CVD工艺在制备高性能SiO基负极材料方面的应用潜力。

值得注意的是，本研究采用的化学气相沉积方法与其他常见制备方法（如球磨法、水热法、热解法等）具有如下独特优势：

1）包覆层的均匀性与完整性：与机械球磨法等物理混合方法相比，CVD是一种气相沉积过程，能够在SiO颗粒表面实现分子/原子级别的原位反应与沉积，从而形成连续、致密且厚度均匀的无定形碳包覆层。这种完整的核壳结构能更有效地隔离电解液，并提供更优异的电子导电网络，这是物理混合方法难以实现的。

2）工艺可控性与碳层质量：通过精确控制裂解温度、气体流量和时间等关键参数，CVD工艺可以对碳层的厚度、致密度和石墨化程度进行有效调控。本研究发现900 ℃是最优温度，在此条件下能形成在高导电性和强机械约束力之间取得最佳平衡的碳层。相比之下，许多热解法使用固态碳源，其包覆均匀性和碳层质量往往取决于前驱体的分散性，可控性稍逊。

3）对材料结构的优化作用：CVD过程通常在惰性气氛和较高温度下进行，此过程同时诱导了SiO基体的预歧化反应（$4SiO \rightarrow Si+2SiO_2$），原位生成纳米晶硅和二氧化硅。这种结构有助于提升材料的初始库仑效率和循环稳定性，实现了包覆改性与体相结构优化的协同效应。

4）方法普适性与商业化潜力：CVD技术是一项成熟且可放大的工艺，在半导体、石墨烯等领域已实现大规模应用。本研究验证了其用于SiO负极改性的可行性，为其未来的规模化生产提供了技术路径。相比之下，一些实验室规模的复杂合成方法（如多步水热合成或模板法）虽然能获得特殊结构，但其工艺复杂度和成本可能限制了实际应用。

3 结论

1）以乙炔为碳源，采用化学气相沉积（CVD）技术，在SiO颗粒表面可成功构建均匀的无定形碳包覆层，制备具有核壳结构的C@SiO复合材料。通过优化裂解温度等关键工艺参数，可有效提升材料的导电性、抑制活性物质的体积膨胀、并减轻电极/电解液界面的副反应。性能最优的C@SiO-900负极材料在1 C倍率下经130次循环后，可逆比容量仍高达1 096.2 $mAh \cdot g^{-1}$，显著优于未改性SiO原料（~300 $mAh \cdot g^{-1}$），其首次库仑效率也提升至75.87%。证明了CVD碳包覆是解决SiO材料固有缺陷、实现其高性能化的一种有效途径。

2）CVD工艺中的裂解温度是决定碳包覆层质量（如均匀性、致密度、石墨化程度）及最终复合材料电化学性能的核心因素。优化的温度条件确保了碳层在约束体积膨胀与维持良好离子/电子传导之间的平衡。本工作不仅实现了材料性能的显著改善，更为理解关键工艺参数（如温度）通过影响包覆层微观结构，进而调控复合材料宏观电化学行为的内在关联提供了实验依据和深入见解。

3）虽然在实验室尺度验证了技术路线的可行性，但仍存在局限：一是从实验室间歇工艺向大规模连续化生产的工程放大面临均匀性、成本等挑战；二是仅重点优化了裂解温度，其他参数（如气流、时间）的协同效应有待系统探究；三是对长循环过程中碳层结构演变、SEI膜精确构成与演化等深层机理的认识仍需借助先进原位表征技术深化。基于此，未来研究可聚焦于：开发可放大的连续CVD工艺装备；设计碳包覆SiO与三维导电网络等多级复合结构以寻求性能突破；以及运用原位表征手段深入揭示界面稳定与失效机制，从而推动SiO基负极材料走向实际应用。

参考文献

[1] ZHANG L Q, ZHU C X, YU S C, et al. Status and challenges facing representative anode materials for rechargeable lithium batteries[J]. Journal of Energy Chemistry, 2021, 66: 260-294.

[2] ZHANG H, YANG Y, REN D S, et al. Graphite as anode materials: fundamental mechanism, recent progress and advances[J]. Energy Storage Materials, 2020, 36: 147-170.

[3] YANG Y J, WU S X, ZHANG Y P, et al. Towards efficient binders for silicon based lithium-ion battery anodes[J]. Chemical Engineering Journal, 2020, 406: 126807.

[4] DONG Y Y, NIU M, LIANG J Y, et al. Honeycomb-like porous carbon framework with consecutive conductive channels for stable SiO_x/C anodes[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2025, 17(32): 45660-45667.

[5] DUAN H Y, CHEN C Y, PANG H, et al. SiO_x based ($0<x<2$) composites for lithium-ion batteries[J]. Chinese Chemical Letters, 2020, 31(3): 654-666.

[6] SHI H B, ZHANG H, LI X X, et al. In situ fabrication of dual coating structured SiO/1D-C/a-C composite as high-performance lithium ion battery anode by fluidized bed chemical vapor deposition[J]. Carbon, 2020, 168: 113-124.

[7] ZOU F, MANTHIRAM A. A review of the design of advanced binders for high-performance batteries[J]. Advanced Energy Materials, 2020, 10(45): 2002508.

[8] HAN L, LIU T F, SHENG O W, et al. Undervalued roles of binder in modulating solid electrolyte interphase formation of Silicon-based anode materials[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2021, 13(38): 45139-45148.

[9] FANG X, ZHU G J, YUAN S, et al. Interfacial encapsulation stress management of micron-sized porous SiO anodes for high-energy lithium-ion batteries[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2023, 11(2): 972-982.

[10] KUO C Y, HSU H P, LAN C W. Scalable chemical prelithiation of SiO/C anode material for lithium-ion batteries[J]. Journal of Power Sources, 2023, 558: 232599.

[11] JIN C X, DAN J L, ZOU Y, et al. Carbon-coated nitrogen doped SiO_x anode material for high stability lithium ion batteries[J]. Ceramics International, 2021, 47(20): 29443-29450.

[12] BRAHMA S, LIN Y P, TUNG S J, et al. Room temperature synthesis of SiO_x/rGO composite as anode material in lithium ion battery[J]. Materials Letters, 2021, 299: 130043.

[13] JIAO M L, WANG Y F, YE C L, et al. High-capacity SiO ($0 \leqslant x \leqslant 2$) as promising anode materials for next-generation lithium-ion batteries[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2020, 842: 155774.

[14] ZHAI L D, HOU C P, SUN H H, et al. Polypyrrole in-situ coated SiO as anode material for lithium-ion batteries with excellent cyclic performance[J]. Journal of Energy Storage, 2024, 97: 112715.

[15] WU Z L, JI S B, LIU L K, et al. High-performance SiO/C as anode materials for lithium-ion batteries using commercial SiO and glucose as raw materials[J]. Rare Metals, 2021, 40(5): 1110-1117.

[16] LEE B S, OH S H, CHOI Y J, et al. SiO-induced thermal instability and interplay between graphite and SiO in graphite/SiO composite anode[J]. Nature Communications, 2023, 14(1): 150. DOI: 10.1038/s41467-022-35769-2.

[17] HU Z Q, XU X F, WANG X F, et al. Ultrafine SnO2 nanoparticles anchored in the porous corn straw carbon substrate for high-performance Li-ion batteries application[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2020, 835: 155446.

[18] ASHURI M, HE Q R, SHAW L L. Silicon oxides for Li-ion battery anode applications: toward long-term cycling stability[J]. Journal of Power Sources, 2023, 559: 232660.