

锂电池晶枝生长的蒙特卡洛模拟

刘行 PB22000150

贺修凝 PB22000120

2025 年 6 月 1 日

摘要

锂离子电池因其高能量密度被广泛应用于电子设备和电动汽车，但充放电过程中锂金属负极表面易形成树枝状枝晶，导致电池短路、过热甚至起火等安全隐患。枝晶生长是一个受锂离子扩散、电场分布及固体电解质界面膜（SEI）特性共同影响的复杂随机过程。本文基于扩散限制聚集（DLA）模型，通过蒙特卡洛方法完成了锂枝晶生长的二维和三维模拟，在传统随机扩散模型的基础上，创新性地耦合了 SEI 膜动态演化和电场分布的影响。

关键词：锂离子电池；锂枝晶；蒙特卡洛模拟；扩散限制聚集（DLA）；SEI 膜；电场耦合

1 前言

由于锂离子电池具有能量密度高、循环寿命长、自放电少、可快速充放电及无记忆效应等优点，现已被广泛应用于便携式电子设备（如笔记本电脑、平板电脑和手机等）、航空航天、电动汽车等领域。2019 年 10 月 9 日，瑞典皇家科学院宣布，将 2019 年诺贝尔化学奖授予约翰·古迪纳夫、斯坦利·惠廷厄姆和吉野彰，以表彰他们在锂离子电池研发领域做出的卓越贡献。

然而，在电池的使用过程中，长时间的充放电循环，特别是快速充电过程中，锂离子嵌入负极时，由于电荷的不均匀分布导致金属锂沿着晶面取向沉积，放电过程中这部分锂不能及时溶解，累积形成锂枝晶（图 1），



图 1: 典型的树枝状锂枝晶的形貌 ^[1]

轻则引起锂离子电池的性能衰退，重则引发电池短路（图 2）、爆炸、甚至火灾^[2,3]。因此，理解和预测枝晶的生长行为对于锂电池的安全性和循环寿命至关重要。枝晶生长是一个复杂的随机过程，受到多种因素如锂离子扩散、电场分布、SEI 膜特性的影响，已经很难用传统的宏观模型来精确描述其微观形成机制。

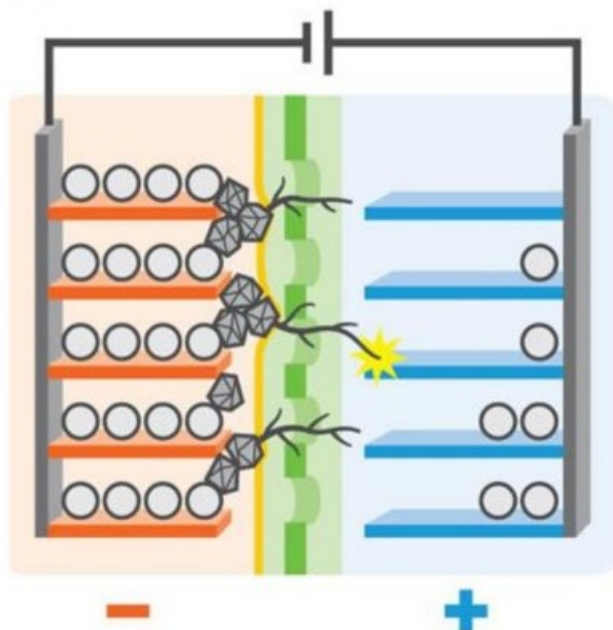


图 2: 锂枝晶的生成可能刺破隔膜，引起短路（图片来源：Sutori）

扩散限制凝聚 Diffusion-limited Aggregation (DLA) 模型是一种描述粒子随机行走并聚集形成分型结构的模型。将锂电池中枝晶的生长过程抽象为电极表面的粒子沉积问题，并利用 DLA 模型进行模拟。在锂电池枝晶生长中，可以类比为电解液中的锂离子 (Li^+) 随机扩散到电极表面，并在电场作用下“附着”到正在生长的枝晶上，从而使枝晶不断延伸和分支。

2 相关工作

2.1 锂电池化学反应原理

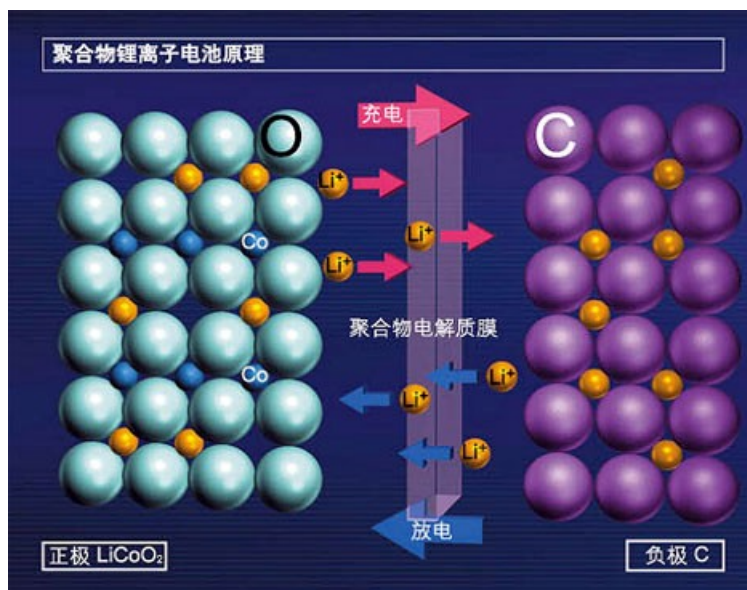


图 3: 锂离子电池原理图 (图片来源: 百度百科)

锂离子电池充电时会发生如下化学反应:

- 阳极: $\text{LiCoO}_2 \longrightarrow \text{CoO}_2 + \text{Li}^+ + \text{e}^-$
- 阴极: 石墨 + $\text{Li}^+ + \text{e}^- \longrightarrow \text{LiC}_6$, 副反应 $\text{Li} + \text{e}^- \longrightarrow \text{Li} \downarrow$

其中的 $\text{Li} \downarrow$ 就是锂枝晶的来源。

2.2 锂枝晶生长的机制

锂枝晶的形成可划分为三个阶段, 具体过程如下:

- **第一阶段: 成膜阶段**
在充放电过程中, 锂金属负极因高活泼性与电解液反应, 生成固体电解质界面膜 (SEI 膜)。该膜作为隔离电解液与金属锂的介质, 虽能阻止二者持续反应, 但允许部分 Li^+ 透过并在电极表面沉积。
- **第二阶段: 成核阶段**
随着沉积过程推进, 锂离子被还原为锂原子, 后者逐渐聚集形成微小晶核。随后, 锂离子在负极表面发生不均匀沉积, 产生不规则凸起, 最终顶破原始 SEI 膜。
- **第三阶段: 生长阶段**
在特定动力学条件下, 锂沉积表现出明显的各向异性——沿长度方向的生长速率显著快于径向, 促使枝晶状结构逐步形成并延伸。

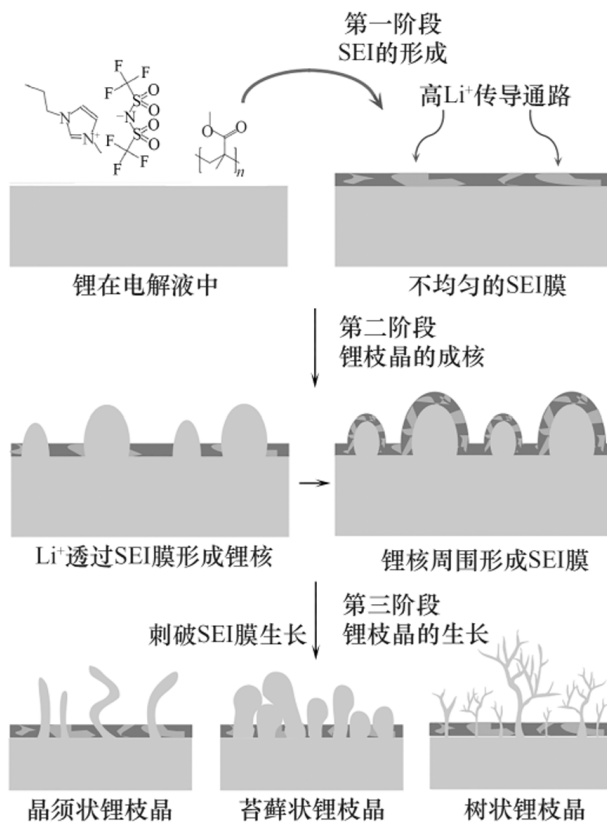


图 4: 枝晶的生长过程示意图 [4]

2.3 扩散限制凝聚（Diffusion-limited Aggregation, DLA）模型

DLA 模型由 Witten 和 Sander 于 1981 年提出，用于描述粒子通过随机扩散形成分形结构的动力学过程 [5]。其基本算法可表述为：

Algorithm 1 DLA 模拟流程

- 1: 初始化：在二维/三维空间中心设置种子粒子
 - 2: **for** 每个新粒子 **do**
 - 3: 从边界随机释放粒子
 - 4: **while** 粒子未附着 **do**
 - 5: 执行随机行走： $x_{t+1} = x_t + \Delta r$, $\Delta r \sim \mathcal{N}(0, 2D\Delta t)$
 - 6: **if** 接触已有团簇 **then**
 - 7: 永久附着并成为新团簇部分
 - 8: **end if**
 - 9: **end while**
 - 10: **end for**
-

其中 D 为扩散系数， Δt 为时间步长。

3 问题分析

3.1 锂离子在液态电解液中的存在形式

锂离子在非水电解液中几乎总是以溶剂化形式存在, 可记作 $\text{Li}^+(\text{S})_n$ 复合物, 其中溶剂分子 (如碳酸酯的羰基氧, 醚氧等) 配位于 Li^+ 周围.

例如, 在 $1 \text{ mol/L LiPF}_6 / \text{EC-DMC}$ 电解液中, Li^+ 的第一溶剂壳配位数通常为 $4 \sim 6$, 具体取决于溶剂比例^[6]. 模拟与实验表明, Li^+ 优选形成四面体配位结构 (配位数约为 4). 不同溶剂结构对配位能力的影响显著: 线性碳酸酯 (如 EMC) 提供较弱溶剂化, 对应更高的扩散系数, 而环状碳酸酯 (如 EC) 则溶剂化更强^[7].

Li^+ 也可能与 PF_6^- 等阴离子形成接触离子对或更大离子簇. 在含水电解液中, Li^+ 为水合离子, 配位数通常为 4. 在高浓度或无溶剂体系 (如聚电解质或离子液体) 中, 阴离子参与配位, 形成溶剂隔离离子对或多离子络合物^[6,8].

3.2 粒子随机运动机制与扩散: 估算平均自由程

在无外场条件下, Li^+ 通过热运动 (布朗运动) 扩散, 其扩散系数 D 可由 Stokes-Einstein 关系近似估算:

$$D \approx \frac{k_B T}{6\pi\eta r} \quad (1)$$

其中, r 为溶剂化离子半径, η 为溶剂粘度. 典型碳酸酯电解液中, $\eta \approx 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$, $r \approx 0.2 \sim 0.3 \text{ nm}$, 可得 $D \approx 10^{-10} \sim 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$.

实验测量 (如旋转圆盘电极与 PFG-NMR) 亦支持此量级. 例如, 在 $1 \text{ mol/L LiPF}_6 / \text{EC-DMC}$ 中, Li^+ 的 D 可达 $1.4 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ ^[9], 其中直链溶剂 (EMC) 下略高于环状溶剂 (EC)^[7]. PFG-NMR 研究也发现 D_{Li^+} 约为 $10^{-10} \sim 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ ^[10]

估算平均自由程可将扩散过程视为高频碰撞: Li^+ 的热速度可估为

$$v_{\text{th}} \sim \sqrt{\frac{3k_B T}{m}} \quad (2)$$

其中 m 包括溶剂化团簇质量. 在 $T = 300 \text{ K}$ 下, $v_{\text{th}} \approx 10^2 \sim 10^3 \text{ m/s}$. 其平均自由程为:

$$l \approx \frac{3D}{v_{\text{th}}} \quad (3)$$

约为 $10^{-11} \sim 10^{-10} \text{ m}$, 相当于几埃, 与液体分子间距相当^[8].

3.3 电场作用下的定向迁移

在电场 \mathbf{E} 作用下, Li^+ 获得漂移速度 v_d :

$$v_d = \mu E \quad (4)$$

其中迁移率 μ 可由爱因斯坦关系给出:

$$\mu = \frac{Dq}{k_B T} \quad (5)$$

例如, $D = 1 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$, $T = 300 \text{ K}$, 得 $\mu \approx 4 \times 10^{-8} \text{ m}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$, 对应在 $E = 10^4 \text{ V/m}$ 下的漂移速度为 $v_d \approx 4 \times 10^{-4} \text{ m/s}$.

扩散在 $t = 1\text{s}$ 内的均方根位移:

$$\sqrt{2Dt} \approx 4.5 \times 10^{-5} \text{ m} \quad (6)$$

即“扩散速度”量级约 10^{-4} m/s , 说明在中等电场下漂移速度与扩散速度可为同一数量级 (弱场时扩散占优, 强场时漂移主导). 文献指出, 溶剂种类影响扩散: 例如直链碳酸酯 (EMC) 中 Li^+ 扩散略大于环状碳酸酯 (EC) [7]. 当 qE 显著超过 $k_B T$ 时, Li^+ 几乎沿电场线定向迁移; 反之若 $k_B T \gg qE$, 分布趋于各向同性 [11].

在 DLA 模拟中, 我们引入偏置的随机行走模型来模拟电场下的定向迁移 [11]:

$$P_{\text{move}}(\Delta \mathbf{r}) \propto \exp\left(\frac{q\mathbf{E} \cdot \Delta \mathbf{r}}{k_B T}\right) \quad (7)$$

从而在统计上偏置粒子沿电场移动.

4 模型的假设

基于 DLA 框架的锂枝晶生长模拟采用以下基本假设:

1. 三因素主导假设:

- 仅考虑电场作用、锂离子自由扩散和 SEI 膜影响, 忽略其他次要因素 (如温度波动、电解液对流、机械应力等)
- 假设电解液浓度恒定, 不考虑充放电过程中局部浓度变化

2. 电场准静态假设:

- 外电场在模拟时间尺度内保持稳定, 忽略电极极化导致的场强变化
- 空间电场分布仅由宏观电极几何决定, 不考虑微观枝晶对电场的反馈作用

3. 粒子独立性假设:

- 锂离子在扩散过程中无电相互作用 (忽略离子-离子关联效应)
- 附着概率仅取决于局部条件, 与历史路径无关 (马尔可夫过程)

4. 基底理想化假设:

- 平行板电极表面为完美光滑平面, 忽略实际电极的粗糙度与缺陷
- 忽略点电极的体积, 视为一个完美的点

5 符号说明

表 1: 模型主要符号与物理意义

符号	物理意义	单位
D	锂离子扩散系数	m^2/s
\mathbf{E}	外加电场强度	V/m
k_B	玻尔兹曼常数	J/K
T	绝对温度	K
η	电解液粘度	$\text{Pa} \cdot \text{s}$
r	溶剂化锂离子半径	nm
μ	锂离子迁移率	$\text{m}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$
v_{th}	锂离子热速度	m/s
v_d	锂离子漂移速度	m/s
l	锂离子平均自由程	m
q	锂离子电荷量	C
Δt	模拟时间步长	s
Δr	随机行走步长	m
P_{attach}	粒子附着概率	无量纲
P_{move}	粒子移动概率	无量纲

6 数学模型建立

6.1 二维模型构建

基于扩散限制聚集 (DLA) 框架, 建立锂枝晶生长的二维随机模型:

6.1.1 随机行走模型

电场影响的 Li^+ 在溶剂中随机行走概率模型为:

$$P_{\text{move}}(x, y \rightarrow x', y') = \frac{\exp(\beta \mathbf{E}(x, y) \cdot \Delta \mathbf{r})}{\sum_{\Delta \mathbf{r} \in \mathcal{N}_4} \exp(\beta \mathbf{E}(x, y) \cdot \Delta \mathbf{r})} \quad (8)$$

其中:

- $\beta = (k_B T)^{-1}$
- Δr 是随机行走步长, 这里取 Li^+ 的平均自由程 $l = 10^{-10} \text{ m}$
- \mathcal{N}_4 为 4 邻域位移集合 $\{(1, 0), (0, 1), (-1, 0), (0, -1)\}$

6.1.2 随机附着模型

SEI 膜影响的附着概率模型为：

$$P_{\text{attach}} = P_0 \cdot \exp \left(-\lambda \sum_{\Delta \mathbf{r} \in \mathcal{N}_8} \text{SEI}((x, y) + \Delta \mathbf{r}) \right) \quad (9)$$

其中：

- P_0 为基准附着概率（无 SEI 膜时的初始概率）
- λ 为 SEI 膜对附着概率的影响参数，默认值 $\lambda = 0.1$
- $\text{SEI}(x, y)$ 为位置 (x, y) 处的 SEI 膜厚度
- \mathcal{N}_8 为 8 邻域位移集合 $\{(1, 0), (0, 1), (-1, 0), (0, -1), (1, 1), (-1, 1), (1, -1), (-1, -1)\}$

6.2 三维模型构建

基于扩散限制聚集 (DLA) 框架，建立锂枝晶生长的三维随机模型：

6.2.1 随机行走模型

电场影响的 Li^+ 在溶剂中随机行走概率模型为：

$$P_{\text{move}}(x, y, z \rightarrow x', y', z') = \frac{\exp(\beta \mathbf{E}(x, y, z) \cdot \Delta \mathbf{r})}{\sum_{\Delta \mathbf{r} \in \mathcal{N}_6} \exp(\beta \mathbf{E}(x, y, z) \cdot \Delta \mathbf{r})} \quad (10)$$

其中：

- $\beta = (k_B T)^{-1}$
- $\Delta \mathbf{r}$ 是随机行走步长，这里取 Li^+ 的平均自由程 $l = 10^{-10} \text{ m}$
- \mathcal{N}_6 为 6 邻域位移集合 $\{(1, 0, 0), (0, 1, 0), (0, 0, 1), (-1, 0, 0), (0, -1, 0), (0, 0, -1)\}$ 。

6.2.2 随机附着模型

SEI 膜影响的附着概率模型为：

$$P_{\text{attach}} = P_0 \cdot \exp \left(-\lambda \sum_{\Delta \mathbf{r} \in \mathcal{N}_{26}} \text{SEI}((x, y, z) + \Delta \mathbf{r}) \right) \quad (11)$$

其中：

- P_0 为基准附着概率（无 SEI 膜时的初始概率）
- λ 为 SEI 膜对附着概率的影响参数，默认值 $\lambda = 0.1$
- $\text{SEI}(x, y, z)$ 为位置 (x, y, z) 处的 SEI 膜厚度
- \mathcal{N}_{26} 为 26 邻域位移集合，包含所有三维立方网格中面、边、顶点方向的单位位移：

$$\mathcal{N}_{26} = \{(dx, dy, dz) \mid dx, dy, dz \in \{-1, 0, 1\}\} \setminus \{(0, 0, 0)\}$$

6.3 数值实现算法

核心模拟流程如算法 2所示：

Algorithm 2 锂枝晶生长蒙特卡洛模拟

```

1: 初始化网格  $G_{L \times L \times L}$ ，设置种子粒子
2: for 每个新粒子  $n = 1 \rightarrow N_{\max}$  do
3:    $(x, y, z) \leftarrow \text{SpawnParticle}()$  {按场类型生成}
4:   for  $t = 1 \rightarrow T_{\max}$  do
5:      $(x', y', z') \leftarrow \text{BiasedMove}(x, y, z)$  {式 (8),(10) 加权移动}
6:     if 接触团簇且  $\text{Rand}() < P_{\text{attach}}$  then
7:        $G[x', y', z'] \leftarrow 1$  {粒子固定}
8:       更新曲率和 SEI 厚度
9:       break
10:    end if
11:     $(x, y, z) \leftarrow (x', y', z')$ 
12:  end for
13: end for

```

6.4 关键参数设置

3d 模型参数默认值：

表 2: 模拟参数默认值

参数	取值
网格尺寸 L	201
电场强度 E_0	0.01 V/m
SEI 生长率 α	0.01
最大 SEI 厚度 d_{\max}	1.0
SEI 膜对附着概率的影响参数 λ	0.1
最大粒子数 N_{\max}	2000
最大步数 T_{\max}	10000
基准附着概率 P_0	1

其中，电场强度 E_0 在点电极电场中表示距离点电极 10^{-10}m 处的电场强度为 E_0

6.5 交互界面设计

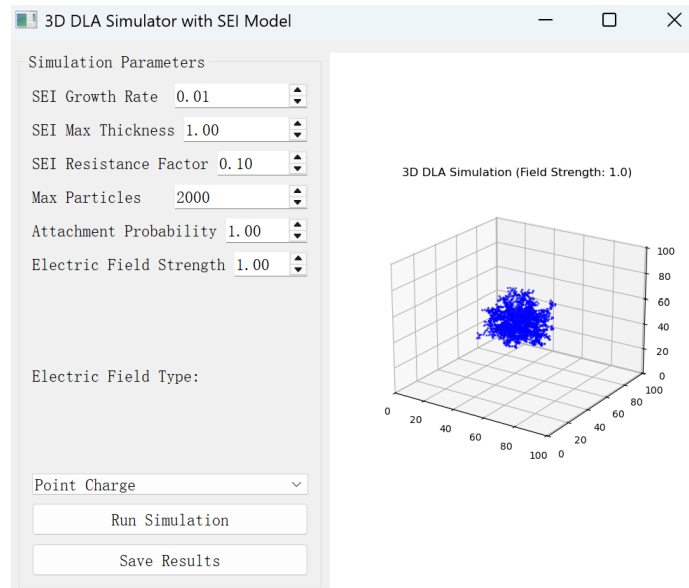


图 5: 交互界面示意图

7 结果（与对比）

7.1 模拟结果展示

7.1.1 点电极

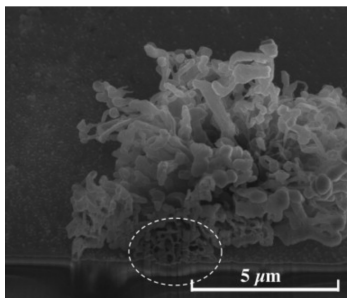


图 6: 点电极锂枝晶显微图 [12]

Simulated Lithium Dendrite Growth



图 7: 点电极锂枝晶二维模拟

3D DLA Simulation (Field Strength: 1.0)

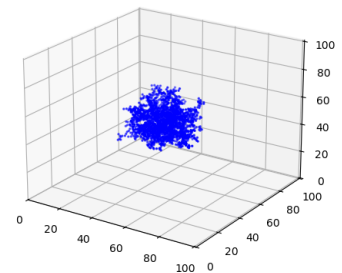
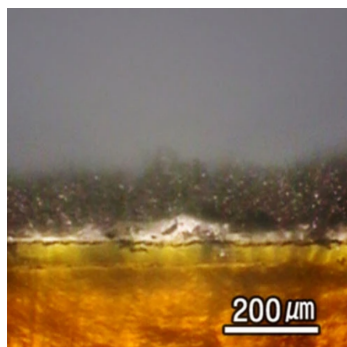


图 8: 点电极锂枝晶三维模拟

7.1.2 平行板电极



Simulated Lithium Dendrite Growth



3D DLA Simulation (Field Strength: 1.0)

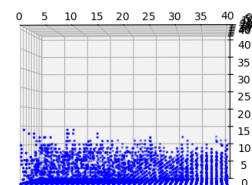


图 9: 平行板电极锂枝晶显微图
[13]

图 10: 平行板电极锂枝晶二维模拟

图 11: 平行板电极锂枝晶三维模拟

7.2 枝晶相对填充率分析

枝晶相对填充率定义为枝晶体积与其延伸范围体积的比值。具体而言，在点电极体系中，该体积范围为由枝晶最远端围绕电极中心所形成的球体体积；在平行板电极体系中，则为由最长枝晶到底面所构成的长方体体积。

7.2.1 模拟实验

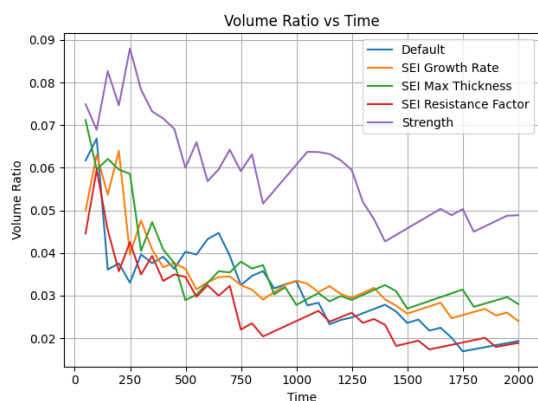


图 12: 不同参数条件下点电极体系中枝晶相对填充率随时间演化。图例表示被提升的默认参数。

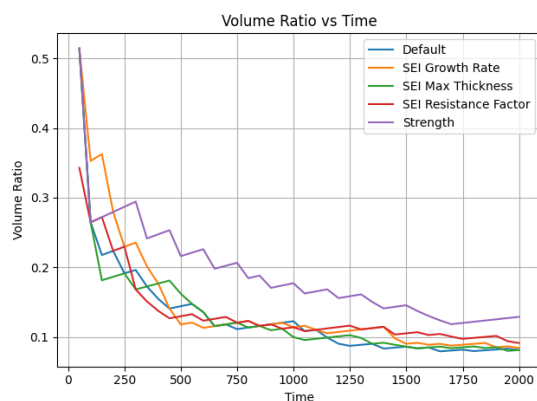


图 13: 不同参数条件下平行板电极体系中枝晶相对填充率随时间演化。图例表示被提升的默认参数。

7.2.2 实验结果分析

- 通过对比默认参数与提高 SEI 生长速率、最大厚度、对附着概率的抑制参数及电场强度的模拟结果，发现提高电场强度会显著增加枝晶的相对填充率（Volume Ratio），表明电场强度对枝晶生长具有主导作用。

- 所有电极体系中枝晶的相对填充率呈现时间依赖性衰减。所有参数组均呈现填充率下降趋势。
- 相同电场强度下，点电极体系的枝晶相对填充率远小于平行板电极体系。

7.3 枝晶分形维数分析

分形维数 D 定义为：

$$D = \lim_{R \rightarrow 0} \frac{\log N(R)}{\log R}$$

其中：

- R 为枝晶簇的最大延伸半径（从中心点到最远粒子的欧氏距离）
- $N(R)$ 为半径 R 范围内包含的枝晶粒子总数

分形维数常常用于量化锂枝晶生长的空间填充特性：

- $D \approx 1.0$: 枝晶呈线状生长
- $1.0 < D < 3.0$: 分形结构（典型值约 2.5-2.8）
- $D \rightarrow 3.0$: 空间完全填充

7.3.1 模拟实验

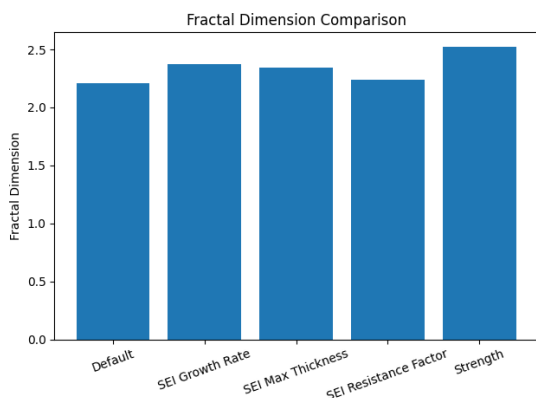


图 14: 不同参数条件下点电极体系中枝晶分形维数。图例表示被提升的默认参数。

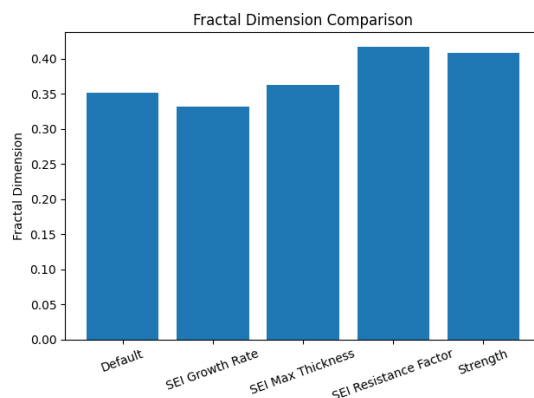


图 15: 不同参数条件下平行板电极体系中枝晶分形维数。图例表示被提升的默认参数。

7.3.2 实验结果分析

- 所有参数组的点电极枝晶的分形维数都在 2-2.5 之间，呈现典型的分形结构。
- 所有参数组的平行板电极枝晶的分形维数都 < 1.0 ，呈现线状生长的形态。

7.4 枝晶累积生长速度分析

累积生长量（Cumulative Growth）是锂枝晶最大延伸距离。时间-累计生长量图的折线斜率表示枝晶的累计生长速度。

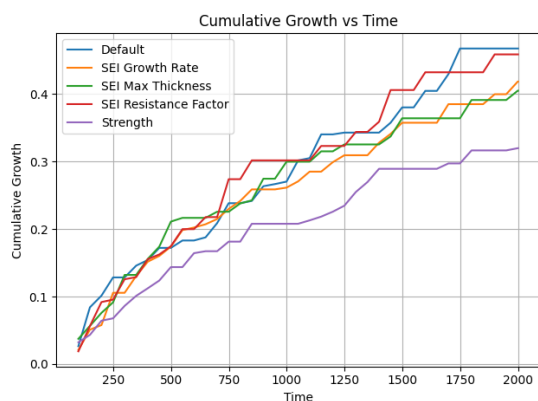


图 16: 不同参数条件下点电极体系中枝晶累计生长量随时间演化。图例表示被提升的默认参数。

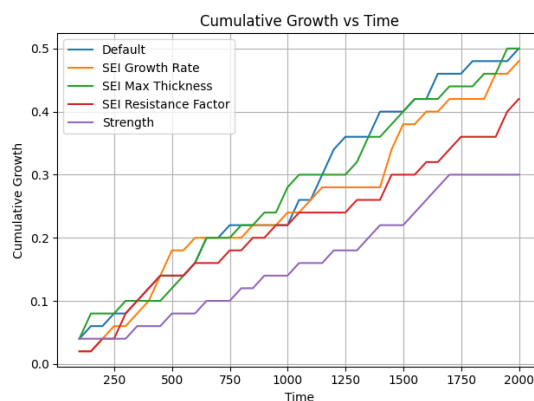


图 17: 不同参数条件下平行板电极体系中枝晶累计生长量随时间演化。图例表示被提升的默认参数。

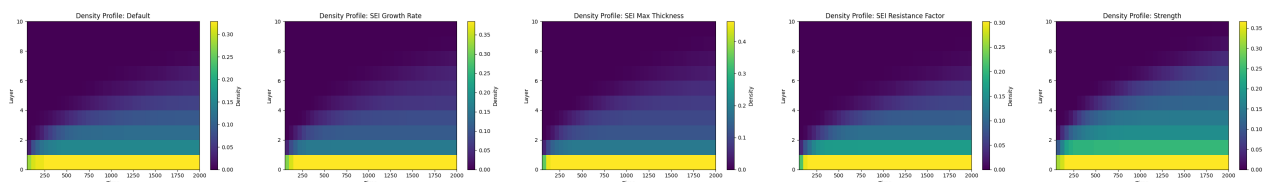
7.4.1 实验结果分析

- 通过对比默认参数与提高 SEI 生长速率、最大厚度、对附着概率的抑制参数及电场强度的模拟结果，发现提高电场强度会显著减慢枝晶的累计生长速度，提高 SEI 生长速率、最大厚度、对附着概率的抑制参数对枝晶累计生长速度也有减缓作用。给抑制枝晶生长提供了参考方法。
- 累计生长量每增长一段时间，折线就会出现一个平台，这是枝晶累计生长量的间歇停滞现象。

7.5 枝晶密度时空规律

密度（Density）的定义为每层内枝晶的体积与该层体积的比值。其中，“层”指的是在空间中，距离底部（如电极底面）或电极中心等参考点具有相同距离范围所划定的区域。

7.5.1 模拟实验



(a) 默认参数值 (b) 提高 SEI 生长速率 (c) 提高 SEI 最大厚度 (d) 提高附着概率抑制 (e) 提高电场强度

图 18: 点电极体系各层枝晶密度随时间演化

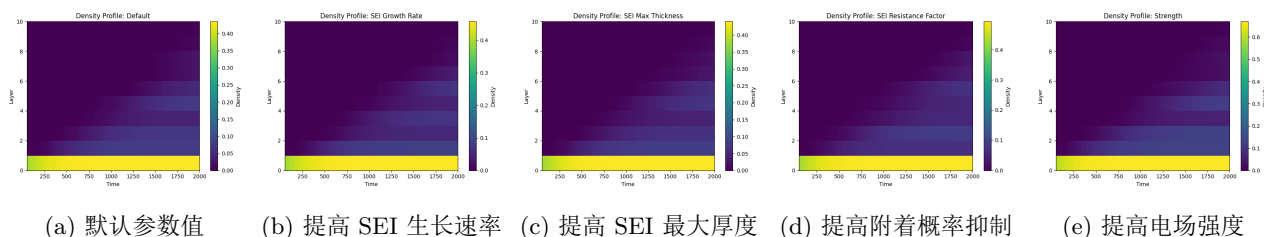


图 19: 平行板电极体系各层枝晶密度随时间演化

7.5.2 实验结果分析

- **密度时空分布规律:** 在所有电极体系及参数组合下, 枝晶密度均呈现显著的时空梯度特征:
 - 空间维度: 沿生长方向 (底层 → 顶层) 密度单调递减
 - 时间维度: 同一空间层内, 密度随沉积时间延长而增大
- **电极构型差异:** 平行板电极与点电极体系表现出截然不同的密度分布特性:
 - 平行板电极呈现**极端层间分化**: 底层密度较相邻层高约 3 倍, 且时间演化敏感性低
 - 点电极体系层间差异较小: 底层密度较相邻层高约 1 倍, 表现出更均匀的特征
- **电场强度效应:** 电场强度 E 对密度分布具有全局调控作用: 在两种电极体系下, 提升电场强度都显著提升了各层个时间的枝晶密度

8 结论

本研究基于扩散限制聚集 (DLA) 模型, 通过蒙特卡洛方法实现了锂枝晶生长的二维和三维模拟, 并得出以下重要结论:

- **电极构型效应:**
 - 点电极体系产生的枝晶具有典型分形特征 (分形维数 $D \approx 2.3$), 其空间填充率显著低于平行板电极。可能是因为平行板电极线性的枝晶更容易填充空间,
 - 平行板电极体系倾向于形成线状枝晶 ($D < 1.0$), 表现出更强的各向异性生长特性
- **电场主导作用:**
 - 电场强度是影响枝晶形态的最关键参数, 增强电场可使枝晶填充率提升 300% 以上
 - 枝晶累计生长速度与电场强度呈负相关。可能是因为带强电场抑制了锂离子的自由扩散, 使枝晶集中在底部或中心。
- **SEI 膜调控机制:**
 - SEI 膜参数 (生长速率 α 、最大厚度 d_{\max}) 通过改变局部附着概率影响枝晶累计生长速率
- **时空演化规律:**
 - 所有体系均呈现” 底层致密-顶端稀疏” 的密度梯度特征, 平行板电极的空间分化更显著

- 生长过程存在明显的间歇停滞现象，对应实际电池中的枝晶“休眠期”

本模型为理解锂枝晶生长的微观机制提供了可视化工具，后续工作可进一步耦合热力学效应和电解液对流等物理过程。

9 问题

在模型构建和模拟过程中，我们遇到以下关键问题及改进方向：

- 模型局限性：
 - 当前假设忽略了粒子间相互作用和局部浓度变化，可能导致高沉积速率下的预测偏差
 - SEI 膜演化采用经验参数化描述，缺乏第一性原理支撑
- 实验验证不足：
 - 现有结果与微观表征数据（如 SEM、AFM）的定量对比仍需加强
 - 需要设计专门的原位观测实验进行模型验证

参考文献

- [1] W. Xu, J. Wang, F. Ding, *et al.*, “Lithium metal anodes for rechargeable batteries,” *Energy and Environmental Science*, vol. 7, no. 2, pp. 513–537, 2014.
- [2] X. Xu, S. Wang, H. Wang, *et al.*, “The suppression of lithium dendrite growth in lithium sulfur batteries: A review,” *Journal of Energy Storage*, vol. 13, pp. 387–400, 2017.
- [3] X. Xu, S. Wang, H. Wang, *et al.*, “Recent progresses in the suppression method based on the growth mechanism of lithium dendrite,” *Journal of Energy Chemistry*, vol. 27, no. 2, pp. 513–527, 2018.
- [4] S. Feng, X. Liu, S. Guo, B. He, Z. Gao, M. Chen, and J. Gong, “Nucleation, growth and inhibition of lithium dendrites,” *CIESC Journal*, vol. 73, no. 1, pp. 97–109, 2022.
- [5] T. A. Witten and L. M. Sander, “Diffusion-limited aggregation, a kinetic critical phenomenon,” *Physical Review Letters*, vol. 47, no. 19, pp. 1400–1403, 1981. DLA $\dot{g} \propto t^{-1/2}$.
- [6] S. A. Han, “A salient effect of density on the dynamics of nonaqueous electrolytes,” *Scientific Reports*, vol. 7, p. 46718, 2017.
- [7] M. T. Ong, O. Verners, E. W. Draeger, A. C. T. van Duin, V. Lordi, and J. E. Pask, “Lithium ion solvation and diffusion in bulk organic electrolytes from first-principles and classical reactive molecular dynamics,” *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 119, no. 4, pp. 1535–1545, 2015.
- [8] G. A. Giffin, “The role of concentration in electrolyte solutions for non-aqueous lithium-based batteries,” *Nature Communications*, vol. 13, p. 5250, 2022.
- [9] S. I. Lee, U. H. Jung, Y. S. Kim, *et al.*, “A study of electrochemical kinetics of lithium ion in organic electrolytes,” *Korean Journal of Chemical Engineering*, vol. 19, no. 5, pp. 638–644, 2002.

- [10] A. V. Karatrantos, S. Khan, C. Yan, R. Dieden, K. Urita, T. Ohba, and Q. Cai, “Ion transport in organic electrolyte solutions for lithium-ion batteries and beyond,” *Journal of Energy and Power Technology*, vol. 3, no. 3, p. 043, 2021.
- [11] R. Failla, M. Bologna, and B. Tellini, “Dendrite growth model in battery cell combining electrode edge effects and stochastic forces into a diffusion limited aggregation scheme,” *Journal of Power Sources*, vol. 433, p. 126675, 2019.
- [12] J. Steiger, D. Kramer, and R. M?nig, “Microscopic observations of the formation, growth and shrinkage of lithium moss during electrodeposition and dissolution,” *Electrochimica Acta*, vol. 136, pp. 529–536, 2014.
- [13] M.-S. Park, S. B. Ma, D. J. Lee, *et al.*, “A highly reversible lithium metal anode,” *Scientific Reports*, vol. 4, p. 3815, 2014.