[Article]

**DOI**: 10.13208/j.electrochem.201250

Http://electrochem.xmu.edu.cn

## "Water-in-salt"聚合物电解质制备及其 电化学性能研究

侯旭1,何欣2,李劼1.3\*

(1. Helmholtz-Institute Muenster (HI MS), IEK-12, Muenster 48149;2. 四川大学化工学院, 四川 成都 610065; 3. Politecnico di Milano, Department of Energy, Milano 20156)

摘要:为提高柔性锂离子电池安全性和循环稳定性能,本实验以自由基聚合结合冷冻干燥得到的聚丙烯酰胺膜 为电解质载体,引入 21 mol·kg<sup>-1</sup> LiTFSI 高浓度电解液,得到"water-in-salt"聚合物电解质。通过聚合物膜的形貌和 孔道结构表征,红外光谱分析,离子电导率及电化学稳定窗口测试等对其基本物化特性进行了研究。冷冻干燥得 到的聚丙烯酰胺膜内部具有大量微孔结构,有利于电解液的载入。将该吸附了电解液的聚合物电解质膜与锰酸锂 (LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)正极和磷酸钛锂(LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>)负极组装全电池进行充放电性能测试。结果表明,制得的柔性聚合物电解质 具有良好的拉伸性能,高离子电导率(20 ℃,4.34 mS·cm<sup>-1</sup>)和宽电化学稳定窗口(3.12 V)。以"water-in-salt"聚合物电 解质为隔膜组装的 LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>||LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> 全电池表现出优异的倍率性能和长循环稳定性。

关键词: "Water-in salt" 电解液; 准固态锂离子电池; 聚合物电解质

#### 1引 言

随着可穿戴及柔性电子产品日趋发展,对高 安全长寿命电池需求越来越强烈<sup>[1]</sup>。柔性超级电容 器和锂离子电池由于具有高能量密度和长使用寿 命等特点一直被作为研究重点。然而,有机电解液 的毒性和可燃性对其实际使用带来了潜在危险。

Dahn 等最早报道了水系电解液在锂离子电池 中的应用<sup>[2]</sup>。相比于有机电解液,水系电解液具有 高安全性,环境友好和低生产成本等优点,使其成 为可穿戴及柔性电子产品提供能源的首选。然而 由于传统水系电解液的电化学稳定窗口较窄,极 大地限制了正负极材料的选择,也使得电池体系 能量密度难以提高<sup>[3]</sup>。临界电位处水催化分解产生 氢气和氧气同时造成了严重的安全隐患。另外还 会出现正极(如 LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)材料中的过渡金属离子在 循环过程中溶解在电解液中,导致容量衰退,降低 其使用寿命<sup>[4]</sup>。近年来,随着高浓度水系电解液 ("water-in-salt"电解液)概念的提出,水系电解液电 化学稳定窗口可拓宽至3V以上<sup>[56]</sup>。SEI 膜的形成, 也很好地抑制了负极上的析氢反应,电池循环性能 和安全性均得到了大幅提升<sup>[7]</sup>。

为进一步提高水系锂离子电池的电池安全 性,减少电解液漏液风险,水凝胶聚合物电解质的 引入使其成为可能<sup>18</sup>。水凝胶聚合物具有良好的拉 伸和压缩性能,将高浓度电解液和水凝胶聚合物 结合,有望得到高安全性和高循环稳定性的柔性 电池体系。聚丙烯酰胺(PAM)水凝胶合成于 1950 年左右,最早被作为介质用于区域离子电泳<sup>19</sup>,具 有无毒环保、价格低廉等特点。由于其具有絮凝 性、增稠性和粘合性,被广泛应用于污水处理、油 田开采和医用材料等领域<sup>100</sup>。近年来在柔性锌离子 电池中的应用报道也越来越多<sup>111</sup>。本文拟采用聚丙 烯酰胺为水凝胶电解质载体,与 21 mol·kg<sup>-1</sup> 双三 氟甲磺酰亚胺锂(LiTFSI)高浓度盐电解液(WiSE)

引用格式: Hou X, He X, Li J. Preparation and characterization of "water-in-salt" polymer electrolyte for lithium-ion batteries. *J. Electrochem.*, 2021, 27(2): 202-207.

收稿日期: 2021-02-02,修订日期: 2021-03-01. \* 通讯作者, Tel: +39-0223998537, E-mail: jie1.li@polimi.it

结合得到"water-in-salt"聚合物电解质,并以锰酸 锂(LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)和磷酸钛锂(LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>)分别作为正 负极材料,对其电化学稳定窗口及在全电池中的 充放电性能进行研究。

#### 2 实 验

#### 2.1 试剂与仪器

自由基聚合反应中原材料丙烯酰胺单体、过 硫酸铵引发剂、N,N-亚甲基双丙烯酰胺交联剂及 四甲基乙二胺加速剂均采购于 Sigma-Aldrich 公司 (分析纯)。

实验中采用德国 Carl Zeiss 公司 Auriga Laser 型扫描电子显微镜 (SEM)进行形貌表征,美国 Bruker 公司 Vertex 70 型红外光谱测试仪(FTIR) 进行结构表征,德国 Novocontrol 公司宽频介电阻 抗谱仪进行离子电导率测试,美国 Maccor 公司 MS4000 系列电池测试系统进行充放电循环测试, 法国 Biologic 公司 VSP3 型电化学工作站进行线 性扫描伏安测试。

#### 2.2 "Water-in-salt"聚合物电解质的制备

"Water-in-salt"聚合物电解质(WiSE-PAM)中的载体聚丙烯酰胺膜由丙烯酰胺单体经自由基聚合所得。实验中将丙烯酰胺单体(*m*<sub>1</sub> mol)溶于去离子水,配得质量分数为16%的丙烯酰胺溶液。然后依次加入过硫酸铵 (*m*<sub>2</sub> mol,*m*<sub>2</sub>:*m*<sub>1</sub> = 0.0025),N,N-亚甲基双丙烯酰胺(*m*<sub>3</sub> mol,*m*<sub>3</sub>:*m*<sub>1</sub> = 0.0012),匀速搅拌30分钟。真空泵抽气10分钟后加入四甲基乙二胺(*m*<sub>4</sub> mol,*m*<sub>4</sub>:*m*<sub>1</sub> = 0.0025),搅拌均匀后将溶液倒在0.2 mm 深玻璃器皿中,用玻璃板盖好后放入60 ℃烘箱进行聚合。30分钟后取出并冷冻干燥得到脱水聚合物膜。最后将聚合物膜浸泡在21 mol·kg<sup>-1</sup>LiTFSI水溶液中得到"water-in-salt"聚合物电解质.

#### 2.3 分析表征

#### 2.3.1 形貌和结构

使用 SEM 对冷冻干燥后的聚合物膜进行形 貌观测,使用 FTIR 对其结构进行表征。

#### 2.3.2 离子电导率

组装不锈钢片|WiSE-PAM|不锈钢片 CR2032 扣式电池,在宽频介电阻抗谱仪上进行电导率测 试,测试频率范围为 1~10<sup>5</sup> Hz,测试温度为 20 ℃ ~80 ℃。

#### 2.3.3 电化学稳定窗口

使用线性扫描循环伏安法(LSV)测试 WiSE 和 WiSE-PAM 电化学窗口。使用不锈钢片作为工

作电极和对电极,Ag/AgCl为参比电极,组装三电极电池进行测试。为方便对比,所有测试结果统一换算成对 Li/Li<sup>+</sup> 电压(3.24 V)。正扫电位和负扫电位分别为开路电位(OCV)~5.10 V和 OCV~1.10 V,扫速为 5 mV·s<sup>-1</sup>。

2.3.4 电化学性能

组装 CR2032 扣式电池进行循环性能和倍率 性能测试。以锰酸锂(LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>,湖南杉杉新材料有 限公司)和自行制备的磷酸钛(LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>)<sup>121</sup>分别作 为正极和负极活性材料。浆料质量配比为活性物 质:乙炔黑:聚偏氟乙烯(PVDF) = 8:1:1。将浆料涂 布在镍片上,先于 80 ℃ 下烘干 12 小时,然后反压 到不锈钢网集流体制成电极片,活性物质负载量 约为 4 mg·cm<sup>-2</sup>。以 WiSE-PAM 作为隔膜,在大气 环境中组装电池。使用 Maccor 电池测试系统测试 电池性能,电压范围为 0.1 ~ 2.0 V。电流密度范围 为 1 ~ 30 C(1 C = 120 mA·g<sup>-1</sup>),比容量计算基于正 负极活性物质质量之和。

#### 3 结果与讨论

# **3.1 "Water-in-salt"**聚合物电解质形貌和结构

图 1(A)所示为"water-in-salt"聚合物电解质 制备示意图。丙烯酰胺单体在引发剂和加速剂作 用下发生自由基聚合,通过交联剂连接聚合物链, 得到交联聚合物 PAM。冷冻干燥后浸泡在 WiSE 电解液中,得到 WiSE-PAM。图 1(B)和(C)分别为 冷冻干燥后聚合物膜的截面和表面 SEM 图像。由 图可见,聚合物膜厚度为 100 μm,膜内有大量微 孔结构,孔径分布约为 10~20 μm。该多孔结构由 冷冻干燥过程中膜内水分迅速结冰并持续挥发所 致,可提高电解液吸液率。图 1(D)为 WiSE-PAM 膜拉伸试验,拉伸长度约为 5 倍,可见该聚合物膜 具有良好的拉伸性能,有利于柔性电池的组装。

图 2(A)为 PAM、WiSE-PAM 和 WiSE 的 FTIR 对比图。出现在 910 cm<sup>-1</sup> 与 1440 cm<sup>-1</sup> 之间的 TFSI<sup>-</sup> 特征峰,在 WiSE 和 WiSE-PAM 图谱上均可见。 WiSE-PAM 中水分子 H-O 键弯曲振动和 C=O 键 拉伸振动吸收峰分别出现在 1633 cm<sup>-1</sup> 和 1688 cm<sup>-1</sup> 处。与 PAM 相比,WiSE-PAM 中 TFSI<sup>-</sup> 阴离子与水 分子和酰胺基会形成锂离子溶剂化基团,成键作用 加强,因此振动吸收峰向高波数移动。另外,PAM 表面吸附的水分子 H-O 键和聚合物中酰胺基 N-H 拉伸振动特征峰分别出现在 3186 cm<sup>-1</sup> 和 3350



图1 (A)WiSE-PAM 制备示意图;聚合物冷冻干燥后的(B)截面和(C)表面 SEM 图像;(D)WiSE-PAM 聚合物电解质膜拉伸测试。(彩图网络版)

Figure 1 (A) Illustration for the WiSE-PAM preparation. The cross section (B) and surface (C) SEM images of the polymer after freeze drying. (D) The tensile test of WiSE-PAM. (color on line)

cm<sup>-1</sup>。在 WiSE-PAM 中水分子主要以结合水形式存 在,因此振动吸收峰向高波数移动,H-O 键特征峰 移动到高波数 3560 cm<sup>-1</sup>处。由此可见,WiSE 与聚 合物膜结合后,PAM 中酰胺基团将参与形成锂离 子溶剂化基团,与水分子产生更强的氢键作用。

图 2(B)为 WiSE 和 WiSE-PAM 电导率对比 图。虽然在 20 ℃ ~ 50 ℃ 之间,聚合物电解质 WiSE-PAM 的电导率虽略低于液体电解液 WiSE, 但在 20 ℃ 时仍然能达到 4.34 mS·cm<sup>-1</sup>,表现出良 好的离子导电性。随着温度逐渐升高,聚合物电解 质电导率逐渐升高至超过液体电解液,80℃时可达19.7 mS·cm<sup>-1</sup>。由此可见,与有机电解液体系相 类似,聚合物电解质电导率受温度影响更高。

#### **3.2 "Water-in-salt"**聚合物电解质的电化学 性能

电解液电化学稳定窗口对全电池正负极材料的选择以及电化学性能具有重要影响。图 3 为通过 LSV 测试得到的 WiSE 和 WiSE-PAM 电化学稳定窗口对比图。如图所示,WiSE 电化学稳定窗口为 3.0 V (1.90~4.90 V vs. Li/Li<sup>+</sup>),与文献报道结



**图 2** (A) PAM, WiSE-PAM 和 WiSE 的 FTIR 对比图;(B) WiSE-PAM 和 WiSE 的电导率对比图。(彩图网络版) Figure 2 (A) FTIR spectra of PAM, WiSE-PAM, and WiSE; (B) The ionic conductivity curves of WiSE-PAM and WiSE. (color on line)



**图 3** 通过 LSV 测试得到的 WiSE-PAM 和 WiSE 的电化学 稳定窗口,扫速为 5 mV·s<sup>-1</sup>。(网络版彩图)

Figure 3 Electrochemical stability windows of WiSE-PAM and WiSE obtained via linear sweep voltammetry at a scan rate of 5 mV·s<sup>-1</sup>. (color on line)

果一致<sup>[5]</sup>。而 WiSE-PAM 中推测由于自由水和酰胺 基之间氢键作用,在聚合物链附件更容易形成形 成自由水富集,从而使得电极表面处自由水含量 相对减少,还原分解电位降低以及氧化电位升高, 因此电化学窗口拓宽至 3.12 V(1.85~4.97 V vs. Li/Li<sup>+</sup>)。此外,对比两种电解液曲线可见,出现在 2.0~2.8 V 之间电解液中自由水的分解,在聚合物 电解质上显示更小的电流密度,说明自由水分解 在该体系中的比例更少,其电化学稳定性更高。

图 4(A)展示了 LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>|WiSE-PAM|LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> 全电池的在 1C 下充放电的循环性能。首圈充电容 量和放电容量分别为 68.1 mAh·g<sup>-1</sup> 和 62.1 mAh·g<sup>-1</sup> (基于正负极活性物质质量总和),库仑效率为 91.2%。循环 3 圈后库仑效率即大于 98%并逐渐趋 近于 100%。100 圈后放电容量为 58.5 mAh·g<sup>-1</sup>,容 量保持率为 94.2%。该全电池体系表现出良好的 循环稳定性和高的库仑效率。图 4B 为首圈充放 电曲线,该体系有 3 个充放电平台依次位于 1.18/1.13 V、1.58/1.50 V 和 1.72/1.66 V,分别对应 LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> 中氧缺陷高电位脱嵌平台(1.18/1.13 V) 和 LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 充放电平台(1.58/1.50 V 和 1.72/1.66 V)<sup>113</sup>。由于 WiSE-PAM 具有宽电化学稳定窗口,该 电池体系在循环过程表现出很高的库仑效率和循 环稳定性。

图 5 为 LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>WiSE-PAM[LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> 全电池 倍率性能和高倍率下的超长循环性能。如图 5(A) 所示,该全电池体系可在 30 C 的高倍率下充放电, 可逆容量达 28.1 mAh·g<sup>-1</sup>,容量保持率为 1 C 初始 容量的 45%。经过高倍率充放电后重新在 1 C 倍率 下循环,可逆容量恢复到 62.6 mAh·g<sup>-1</sup>,倍率性能突 出。图 5B 为 10 C 倍率下循环性能,首圈放电容量 为 53.7 mAh·g<sup>-1</sup>,库仑效率在第 2 圈即高达 99.8%。 5000 次充放电循环后容量仍达 42.3 mAh·g<sup>-1</sup>,容量 保持率为 79%,表现出稳定的长循环性能。

#### 4 结 论

本文以自由基聚合得到的 PAM 为载体,冷冻干燥处理后,引入高浓度水系电解液 21 mol·kg<sup>-1</sup>LiTFSI 得到 WiSE-PAM 聚合物电解质。冷冻干燥后该聚合物电解质膜具有大量尺寸约为 10~20 µm 孔道结



**图 4** LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> 全电池循环性能(A)和首圈充放电曲线(B),充放电区间 0.1 V~2.0 V,测试倍率 1 C(120 mA·g<sup>-1</sup>),比 容量计算基于正负极活性物质质量之和。(网络版彩图)

**Figure 4** (A) Cycle performance of  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$   $\text{LiTi}_2(\text{PO}_4)_3$  full cell and (B) the first charge/discharge profile at 1 C (120 mA  $\cdot$ g<sup>-1</sup>, based on masses of cathode and anode materials) with a charge/discharge range of 0.1 ~ 2.0 V. (color on line)



图 5 LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> 全电池倍率性能(A)和长循环性能(B)(网络版彩图) Figure 5 Rate performance (A) and long-term cycle performance (B) of LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>/LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> full cell. (color on line)

构,有利于电解液的吸入。WiSE-PAM显示出优越的拉伸性能,高离子电导率和宽电化学稳定窗口。用其作为电解质组装成的LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>||LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>全电池表现出优异的倍率性能(30 C,28.1 mAh·g<sup>-1</sup>)和长循环稳定性(5000次,42.3 mAh·g<sup>-1</sup>),有望满足可穿戴设备和柔性电子产品对高性能锂离子电池的需求。

#### 参考文献(References):

- Fang Z H, Wang J, Wu H C, Li Q Q, Fan S S, Wang J P. Progress and challenges of flexible lithium ion batteries[J].
  J. Power Sources, 2020, 454(1): 227932-227948.
- [2] Li W, Dahn J R, Wainwright D S. Rechargeable lithium batteries with aqueous electrolytes[J]. Science, 1994, 264 (5162): 1115-1118.
- [3] Liu Z X, Huang Y, Huang Y, Yang Q, Li X L, Huang Z D, Zhi C Y. Voltage issue of aqueous rechargeable metal-ion batteries[J]. Chem. Soc. Rev., 2020, 49(1): 180-232.
- [4] Tron A, Park Y D, Mun J. AlF<sub>3</sub>-coated LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> as cathode material for aqueous rechargeable lithium battery with improved cycling stability[J]. J. Power Sources, 2016, 325(1): 360-364.
- [5] Suo L M, Borodin O, Gao T, Olguin M, Ho J, Fan X L, Luo C, Wang C S, Xu K. "Water-in-salt" electrolyte enables high-voltage aqueous lithium-ion chemistries[J]. Science, 2015, 350(6263): 938-946.
- [6] Suo L M, Borodin O, Sun W, Fan X L, Yang C Y, Wang F, Gao T, Ma Z H, Schroeder M, von Cresce A, Russell S M, Armand M, Angell A, Xu K, Wang C S. Advanced high-voltage aqueous lithium-ion battery enabled by "water-in-bisalt" electrolyte[J]. Angew. Chem. Int. Ed., 2016, 55(25): 7136-7141.

- [7] Suo L M, Oh D, Lin Y X, Zhuo Z Q, Borodin O, Gao T, Wang F, Kushima A, Wang Z Q, Kim H C, Qi Y, Yang W L, Pan F, Li J, Xu K, Wang C S. How solid-electrolyte interphase forms in aqueous electrolytes[J]. J. Am. Chem. Soc., 2017, 139(51): 18670-18680.
- [8] Liu Z X, Li H F, Zhu M S, Huang Y, Tang Z J, Pei Z X, Wang Z F, Shi Z C, Liu J, Huang Y, Zhi C Y. Towards wearable electronic devices: a quasi-solid-state aqueous lithium-ion battery with outstanding stability, flexibility, safety and breathability[J]. Nano Energy, 2018, 44(1): 164-173.
- [9] Raymond S, Weintraub L. Acrylamide gel as a supporting medium for zone electrophoresis[J]. Science, 1959, 130 (3377): 711.
- [10] Entry J A, Sojka R E, Watwood M, Ross C. Polyacrylamide preparations for protection of water quality threatened by agricultural runoff contaminants[J]. Environ. Pollut., 2002, 120(2): 191-200.
- [11] Li H F, Liu Z X, Liang G J, Huang Y, Huan Y, Zhu M S, Pei Z X, Xue Q, Tang Z J, Wang Y K, Li B H, Zhi C Y. Waterproof and tailorable elastic rechargeable yarn zinc ion batteries by a cross-linked polyacrylamide electrolyte [J]. ACS Nano, 2018, 12(4): 3140-3148.
- [12] He X, Yan B, Zhang X, Liu Z G, Bresser D, Wang J, Wang R, Cao X, Su Y X, Jia H, Grey C P, Frielinghaus H, Truhlar D G, Winter M, Li J, Paillard E. Fluorine-free water-in-ionomer electrolytes for sustainable lithium-ion batteries[J]. Nat. Commun., 2018, 9(1): 5320-5328.
- [13] Luo J Y, Chen L J, Zhao Y J, He P, Xia Y Y. The effect of oxygen vacancies on the structure and electrochemistry of LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> for lithium-ion batteries: A combined experimental and theoretical study[J]. J. Power Sources, 2009, 194(2): 1075-1080.

### Preparation and Characterization of "Water-in-Salt" Polymer Electrolyte for Lithium-Ion Batteries

Xu Hou<sup>1</sup>, Xin He<sup>2</sup>, Jie Li<sup>1,3\*</sup>

(1. Helmholtz-Institute Muenster (HI MS), IEK-12, Muenster 48149, Germany; 2. School of Chemical Engineering Sichuan University, Chengdu 610065, Sichuan, China; 3. Politecnico di Milano, Department of Energy, Milano 20156, Italy)

Abstract: Since the development of wearable and flexible electronic products, the demand of flexible energy storage devices such as batteries and super capacitors is in urgent. To enhance the safety and cycling stability for flexible lithium-ion batteries, "water-in-salt" polymer electrolyte was prepared by introducing 21 mol·kg<sup>-1</sup> LiTFSI electrolyte into cross-linked polyacrylamide (PAM) after freeze-drying. A great amount of holes with the size range of  $10 \sim 20$  µm can be found on the surface and in the bulk of polyacrylamide, which is benefited from the freeze-drying process and acts as a great support for the electrolyte uptake. The "water-in-salt" polymer electrolyte showed good tensile property, high ionic conductivity (4.34 mS · cm<sup>-1</sup> at 20 °C), and broadened electrochemical stability window (ESW, 3.12 V). Comparing the FTIR spectra of PAM, "water-in-salt" electrolyte (WiSE) and WiSE-PAM, the signal that can be assigned to H-O bending mode transfered from 3186 cm<sup>-1</sup> in PAM to higher wavenumber of 3560 cm<sup>-1</sup> in WiSE-PAM. Therefore, it can be inferred that the amide group in PAM participates in the Li<sup>+</sup> solvation sheath in WiSE-PAM electrolyte, due to the hydrogen bond between amide group and water. On the one hand, the Li<sup>+</sup> solvation sheath can transfer through the polymer bone and the liquid in the hole, resulting in high ionic conductivity. On the other hand, due to the hydrogen bond between amide group in PAM bone and free water, the enrichment of free water along the polymer bone can be obtained. Therefore, the free water content on the electrode surface is reduced, resulting in expanded ESW. With this polymer electrolyte, LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>||LiTi<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> full cell showed high initial charge/discharge capacity (68.1/62.1 mAh · g<sup>-1</sup>) and coulombic efficiency (91.2%) at 1 C. The high capacity retention of 94.2% (with discharge capacity of 58.5 mAh • g<sup>-1</sup>) could be obtained after 100 cycles. To evaluate the rate capability, the cells were charged and discharged at different current densities varying from 1 C to 30 C. The remarkable capacity of 28.1 mAh · g<sup>-1</sup> was still retained even at 30 C. After the rate test, the current was decreased back to 1 C, there was still 99.2% of the initial capacity could be recovered. In addition, when cycling at 10 C rate, 79% of the initial capacity was retained even over 5000 cycles. There results demonstrate that the full cell also showed superior rate capability and long-term cycling stability. This work offers an idea for the electrolyte design with high safety to enable the application of high-performance aqueous lithium-ion batteries in flexible electronics.

Key words: water-in-salt electrolyte; quasi-solid-state lithium-ion batteries; polymer electrolyte