

# 第九届 全国储能科学与技术大会

2024年3月 中国·溧阳

## AI<sup>2</sup> for Battery Materials

### 郑家新

2024/03/23



北京大学 深圳研究生院 新材料学院  
PEKING UNIVERSITY Shenzhen Graduate School School of Materials

# AI<sup>2</sup> for Battery Materials

Ab Initio (AI)



Artificial Intelligence (AI)



Zheng\* et al, JPCL 2024

➤ **问题1: 寿命、安全**

商用氧化物正极材料稳定性

➤ **问题2: 能量密度**

锂金属枝晶生长

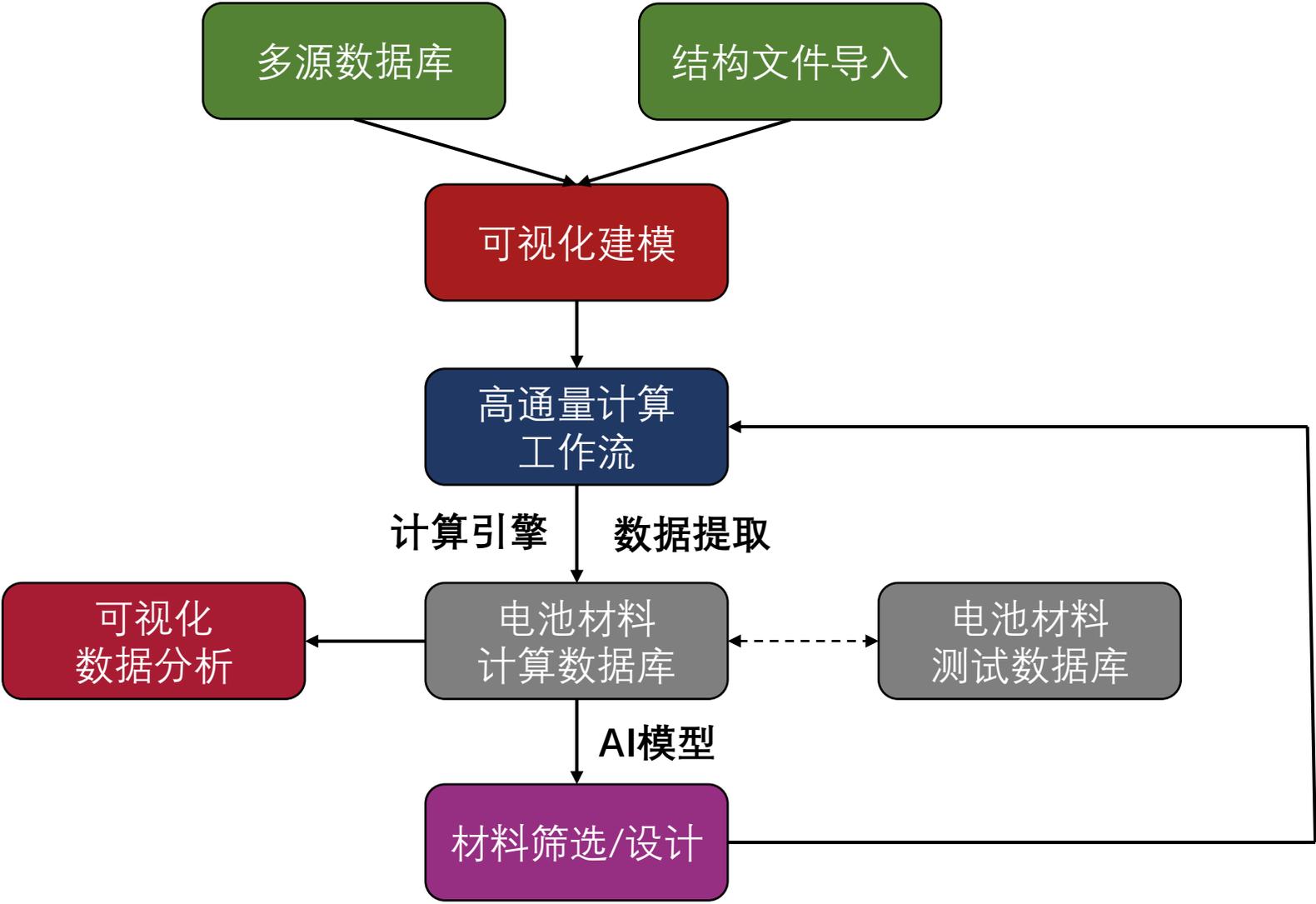
# 材料信息学

➤ 基于数据找规律（机理），优化配方或者工艺



Zheng\* et al, JPCL 2024

## ➤ 基于数据找新材料

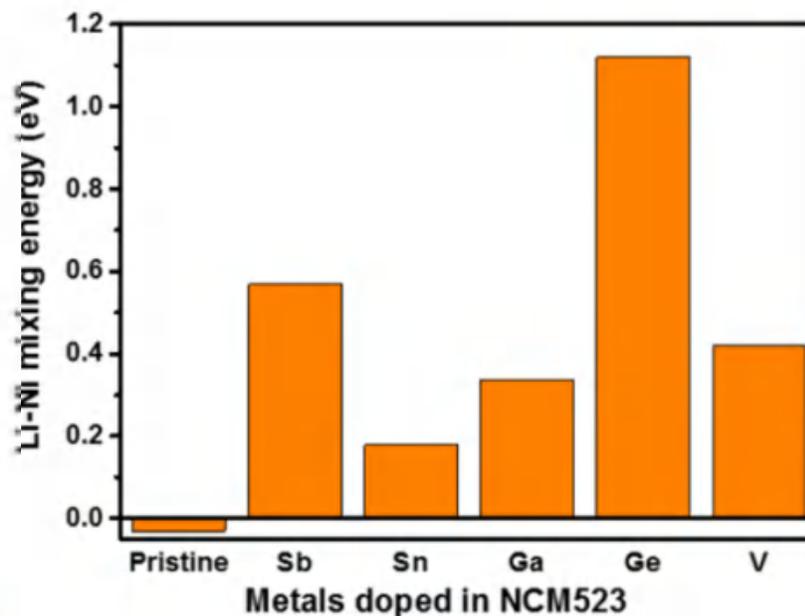
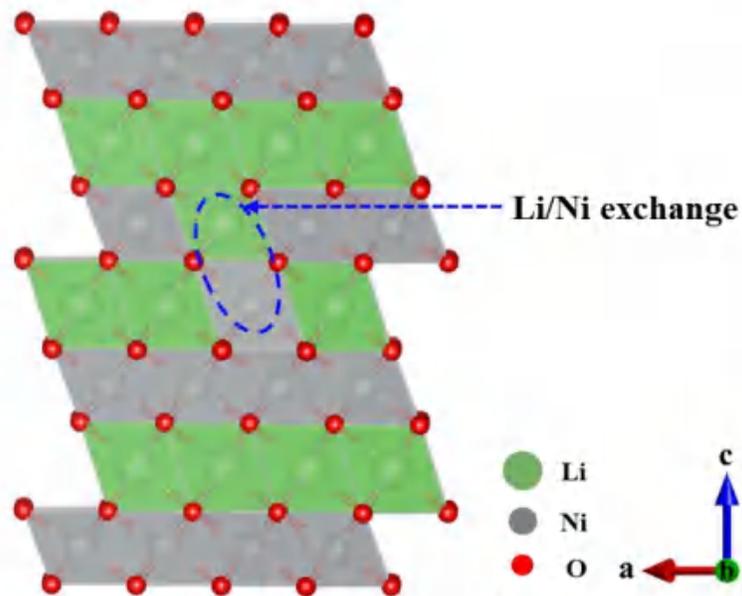


# 可解释机器学习加速分析高镍层状正极材料中 掺杂影响锂镍混排的因素

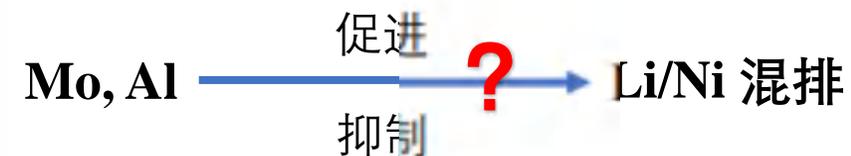
- 研究背景
- 研究方法
- 研究成果

*Zheng\* et al, JPCL 2024*

# 研究背景



*J. Phys. Chem. C* 2021, 125, 19600–19608



*Journal of Power Sources* 2013, 244, 23–28

*Journal of Power Sources* 2007, 174, 730–734

*Ceramics International* 2017, 43, 3483–3488

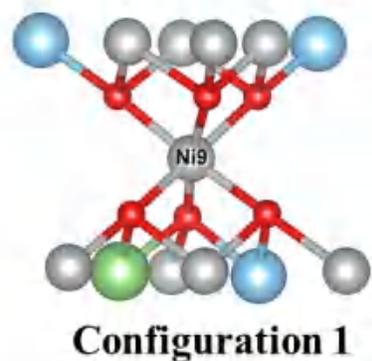
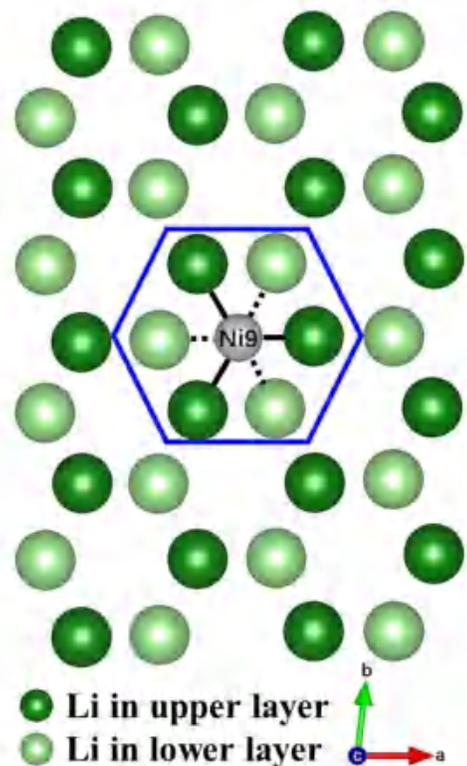
*Journal of Solid State Electrochemistry* 2011, 15, 747–751.

- Li/Ni混排是高镍层状正极材料的固有缺陷
- 可以通过调控该缺陷的程度来调控材料性能
- 掺杂是调控该缺陷的常用重要手段
- 缺乏对于掺杂元素影响反位难易在统一条件下的系统比较研究

# 研究方法：设计反位构型计算反位形成能

$$E_f = E_{tol}^{Li/Ni} - E_{tol}^{initial}$$

NMC811:  $\text{LiNi}_{0.8}\text{Mn}_{0.1}\text{X}_{0.1}\text{O}_2$  (X是掺杂元素)

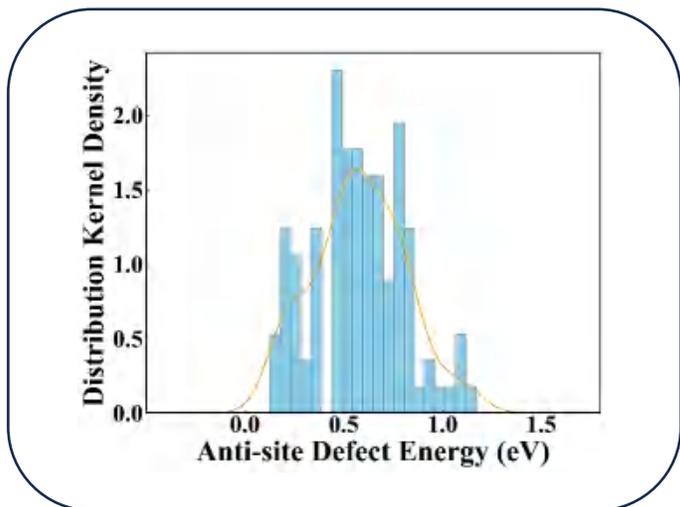


灰色: Ni  
绿色: Li  
紫色: Mn  
红色: O  
蓝色: 掺杂元素

Al	Nb
Co	Rh
Cr	Sc
Ga	Sn
Ge	Ti
In	V
Mg	Y
Mo	Zr

- 对于每一种掺杂元素，六种反位构型，计算反位形成能
- 选取部分掺杂元素中的另一11号Ni，计算验证，结果可靠

# 研究方法：描述符构造及结果拟合



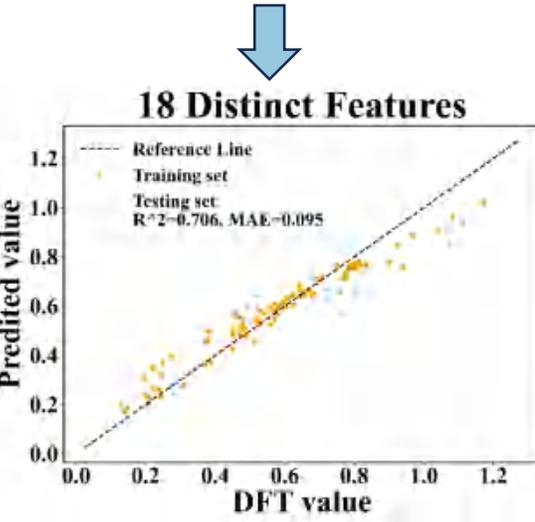
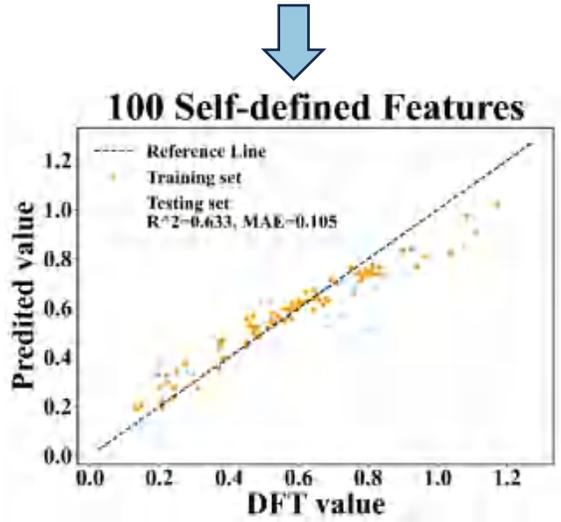
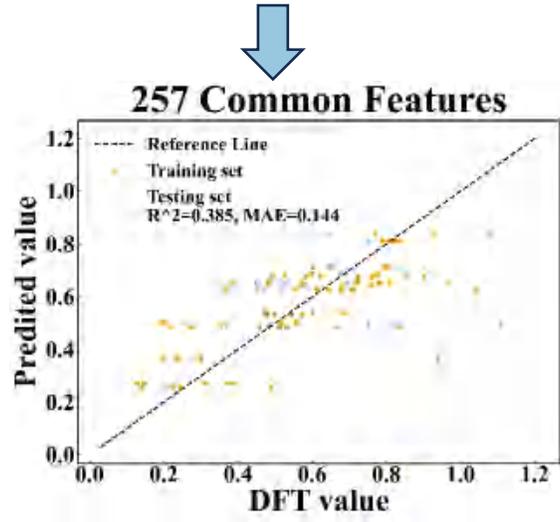
**Matminer Features:**  
Magpie features: 132,  
Deml features: 80,  
Pymatgen features: 45



**Self-defined Features:**  
Electronic features: 56,  
Structural features: 44

**Distinct Features:**  
Electronic features: 11,  
Structural features: 7

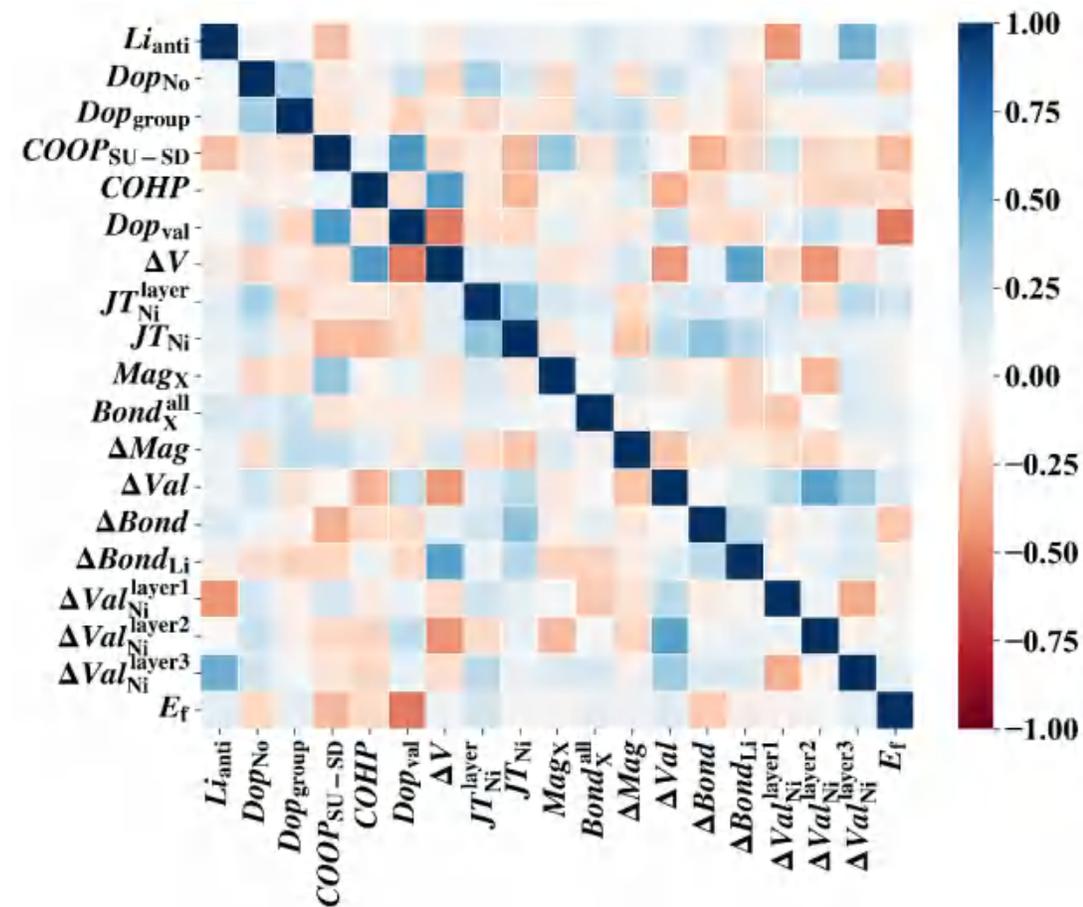
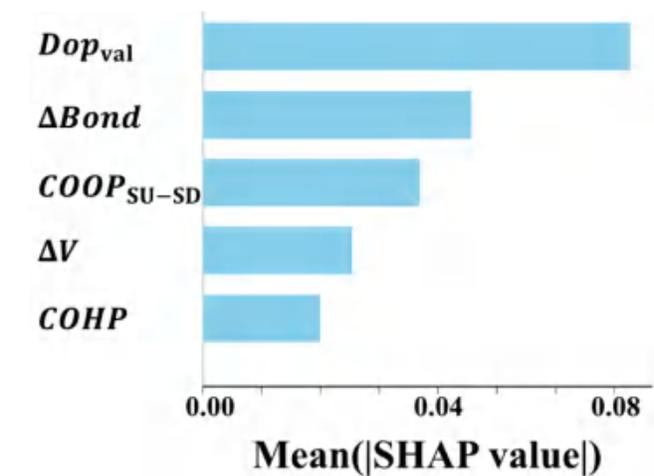
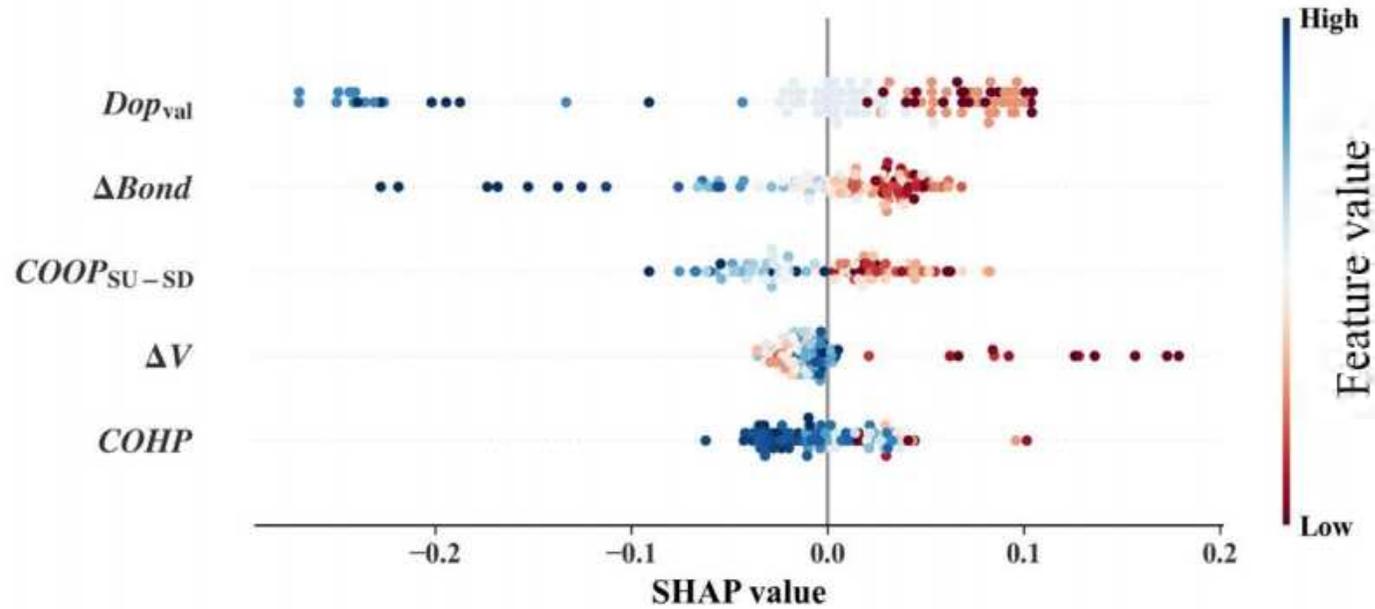
• 发现：使用物理含义清晰且彼此相关性弱的描述符的预测性能更好



使用机器学习加速分析影响材料性能的复杂因素：

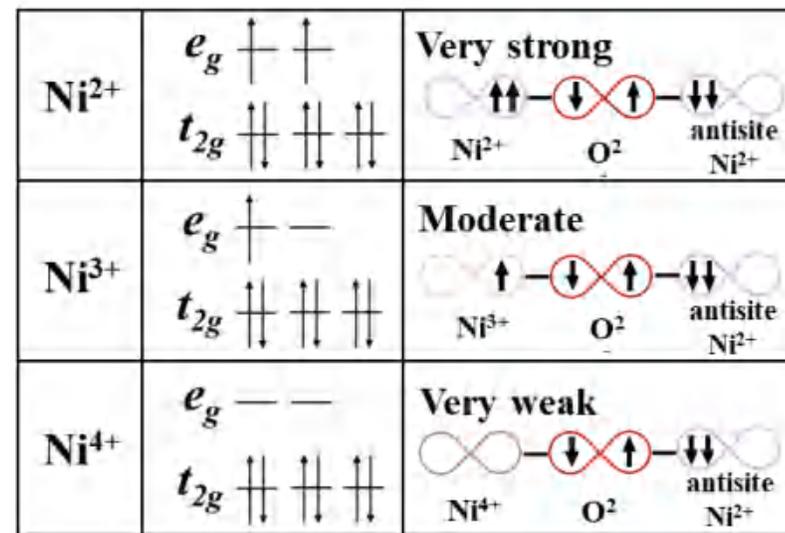
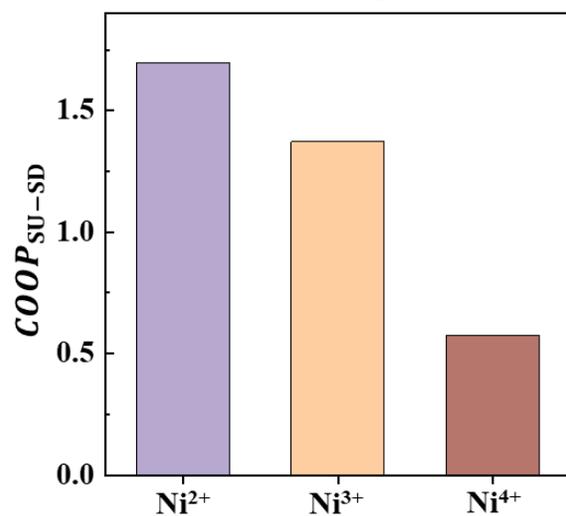
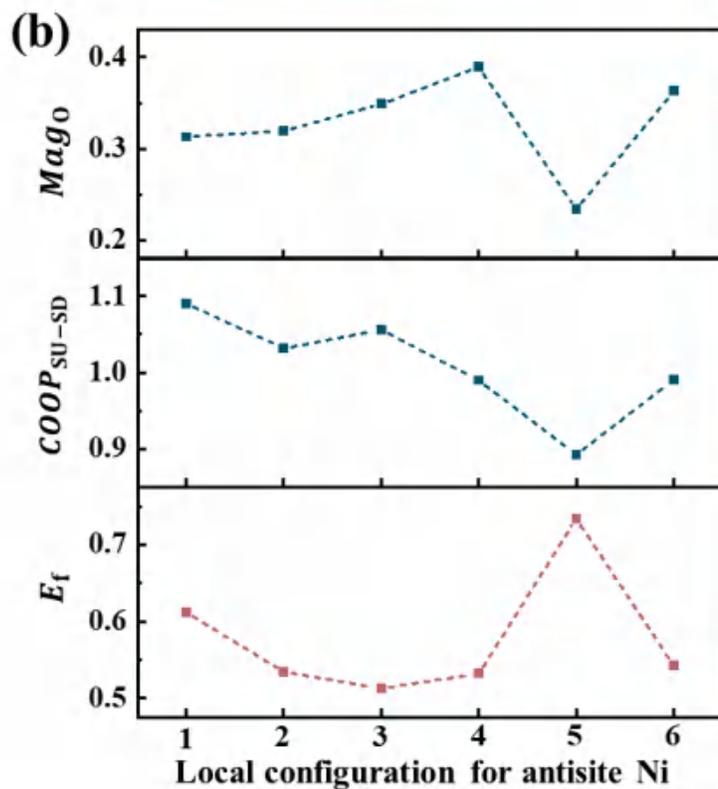
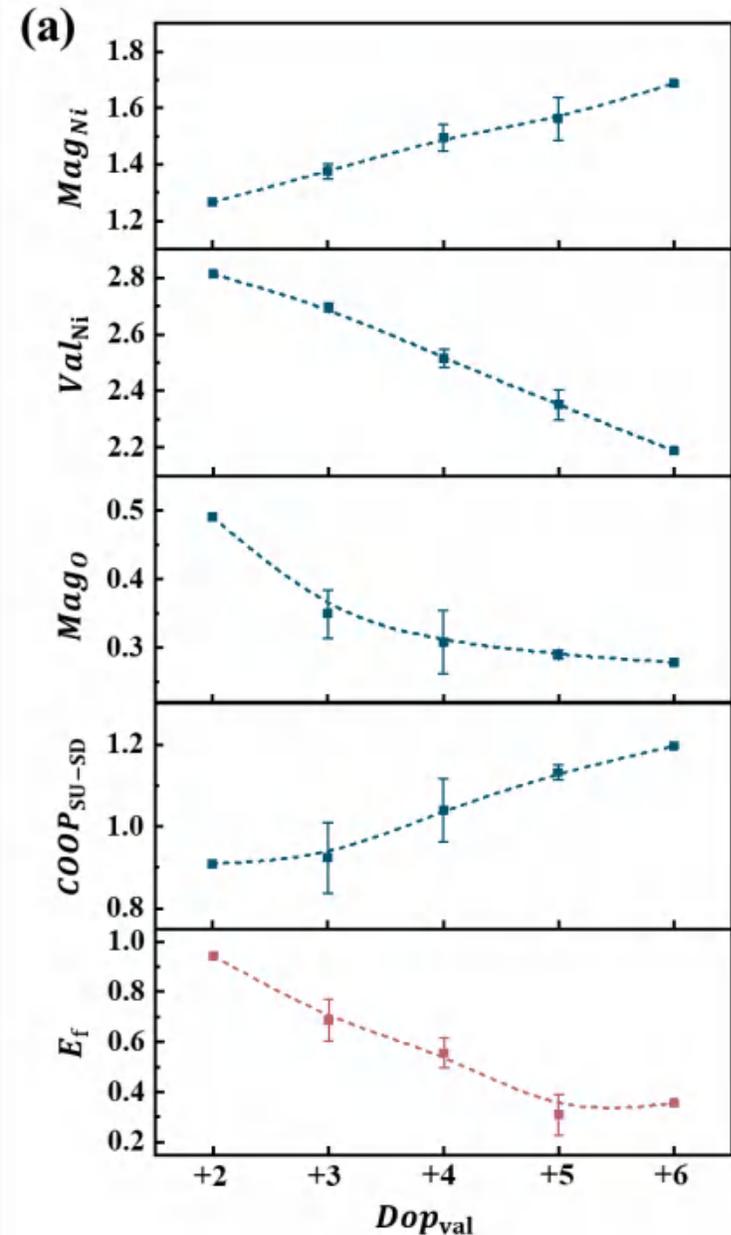
- 根据经验及现有材料分析辅助工具，结合材料的特点，构造尽可能多的描述符
- 做线性相关性分析，删去冗余的描述符，保留相关度较低的几个特征

# 研究方法：特征重要性分析



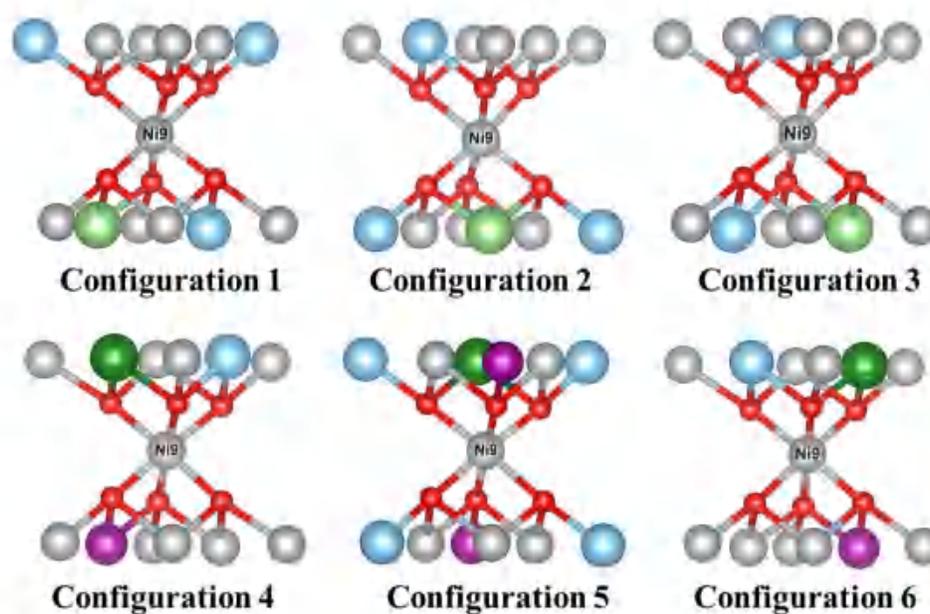
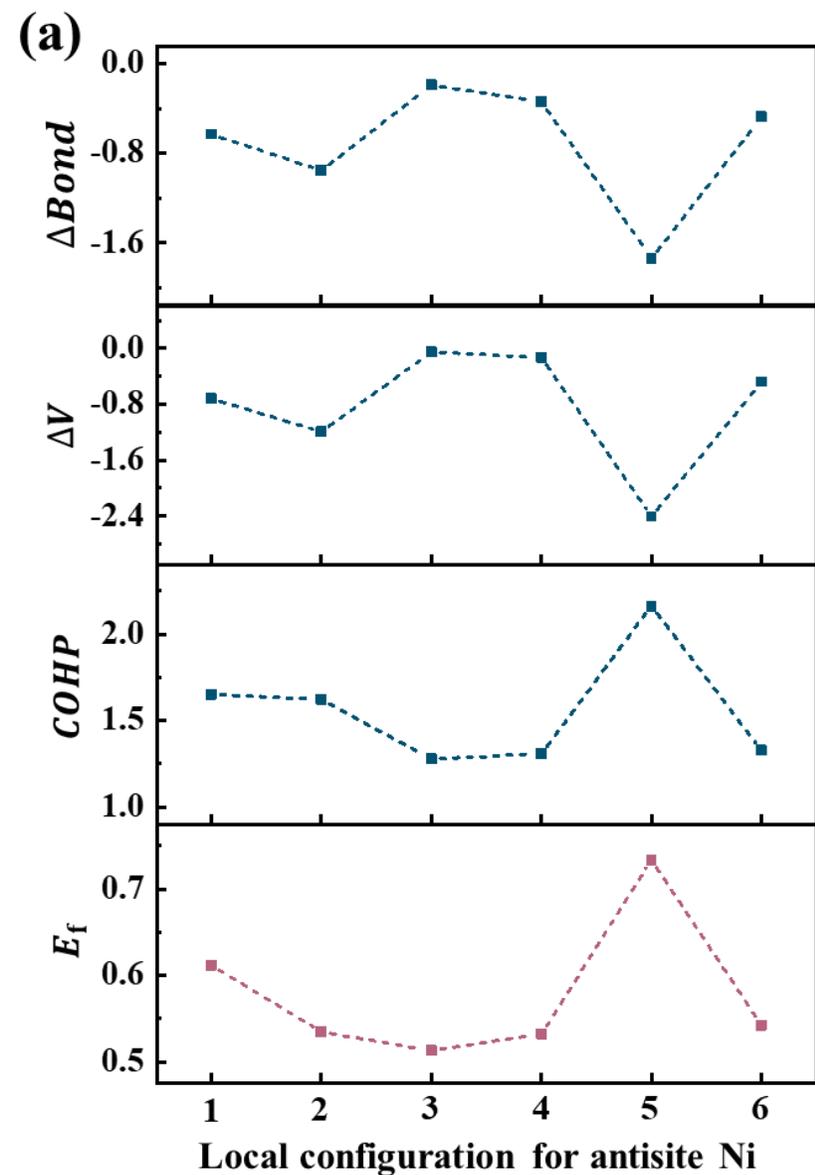
- 特征之间相关性系数均低于0.5，相关性弱
- 对Li/Ni反位缺陷影响显著的特征：
  - 掺杂元素价态、局部超交换作用强弱、键强变化等**电子结构特征**
  - 键长变化、晶胞体积变化等**晶体结构特征**

# 研究结果：电子结构影响



- 掺杂元素价态升高，Ni元素价态降低，O磁矩增加
- 局部构型超交换作用增强，反位更容易
- 发现特征 $COOP_{SU-SD}$ 和 $M_{ago}$ 可用作表征超交换强弱的指标，从而用来指示反位的难易

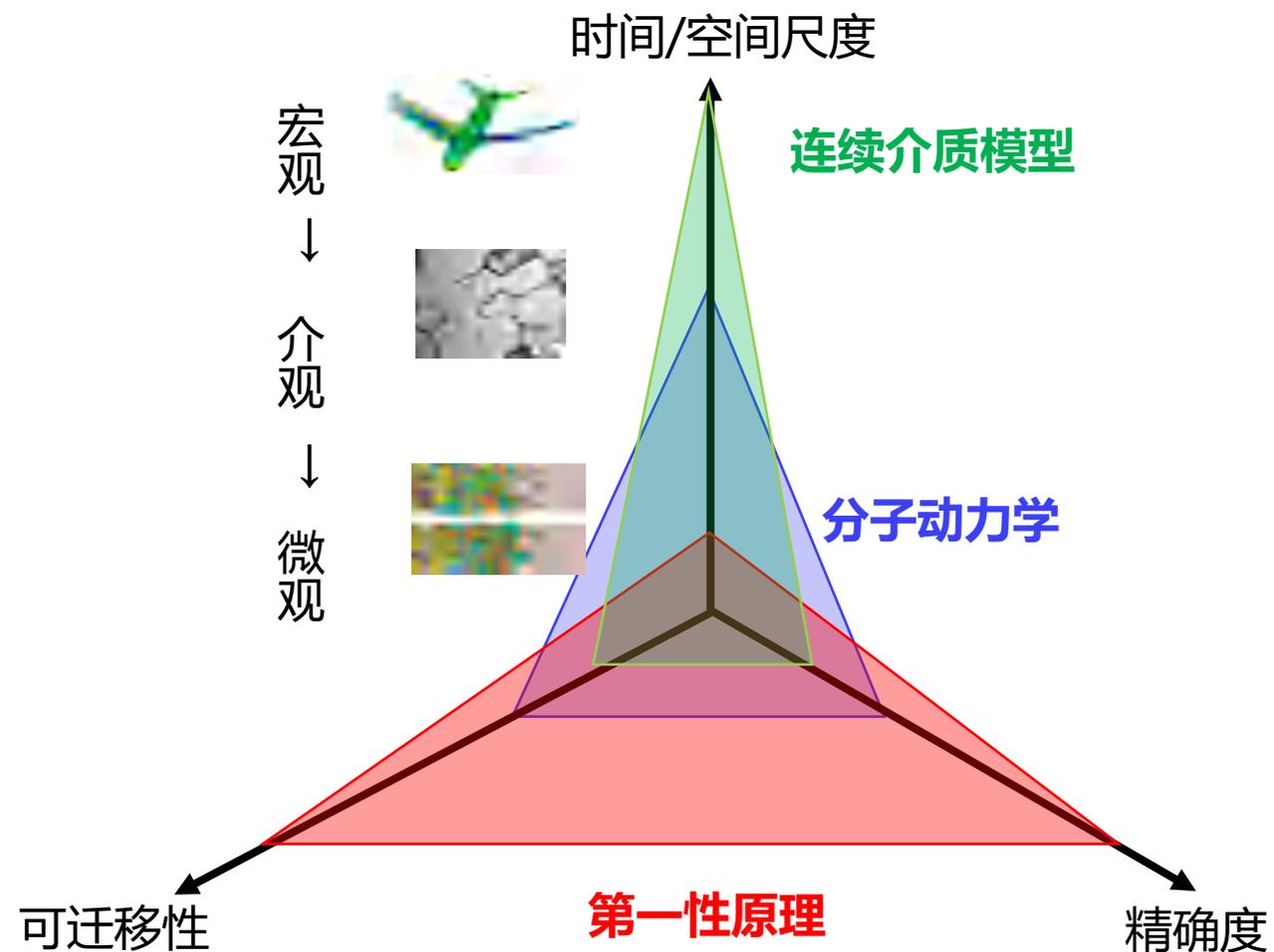
# 研究结果：晶体结构影响



- 对于同种掺杂元素的六种构型局部构型，探究晶体结构的影响，这避免了掺杂元素本身半径和X-O键长不同导致的对规律的掩盖
- 发现反位带来的体积变化越剧烈，反位越困难。体积变化来自于键长的变化，键强的变化也符合同一趋势

# 物理驱动的机器学习突破多尺度仿真问题

➤ 当前多尺度模拟技术无法兼顾时间/空间尺度与精度

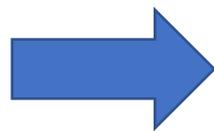
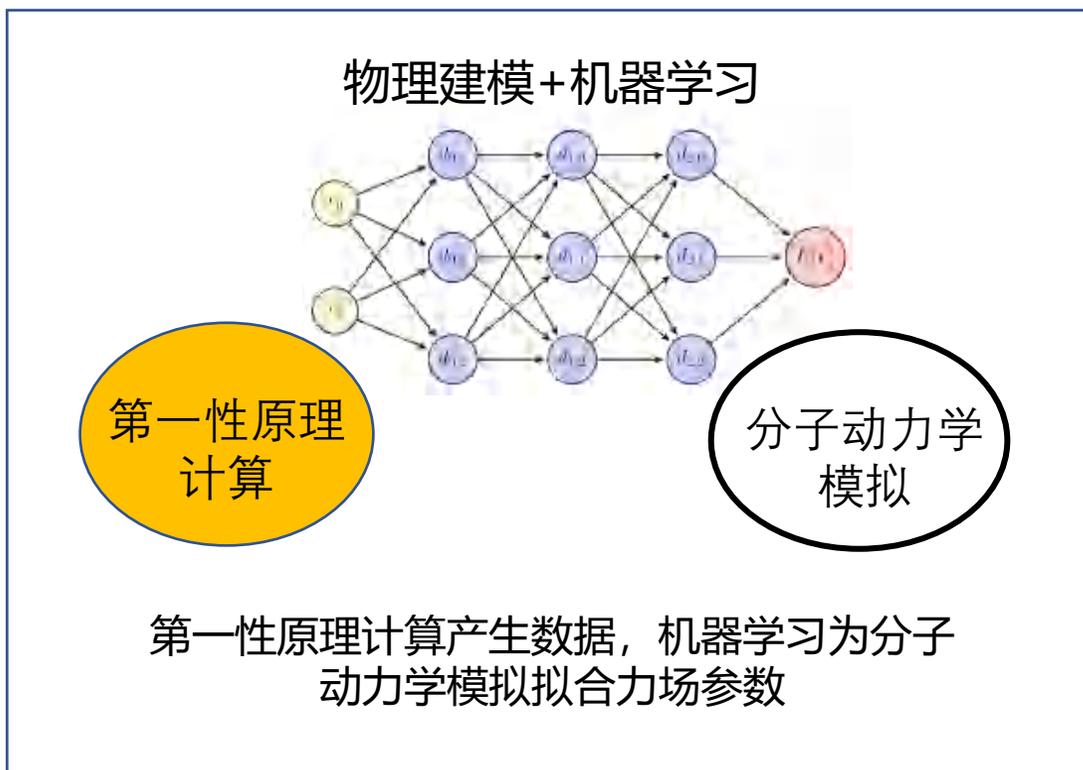


计算方法	第一性原理计算	经典势场
体系大小	$<10^3$	$>10^5$
时间尺度	ps	$\mu\text{s}$
算法复杂度	$O(n^3)$	$O(n)$
准确度	精确	粗糙
计算速度	慢	快

# 物理驱动的机器学习突破多尺度仿真问题

物理驱动的机器学习模型：精度高、效率高

锂金属负极生长机理研究



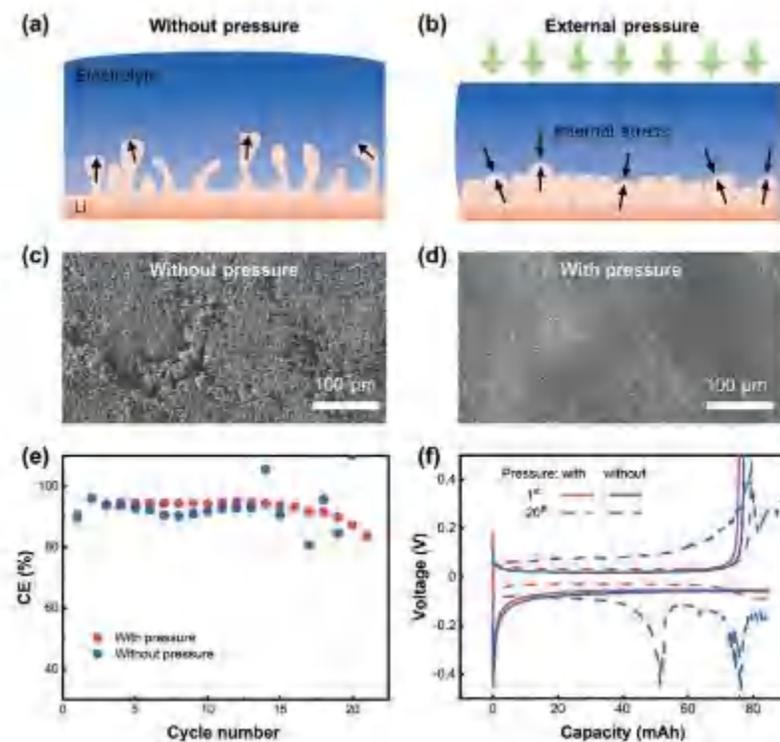
“物理驱动的机器学习模型”确保在任意两个尺度耦合上，既具备微观尺度模拟精度，又具备宏观模型的效率

# 压强对锂枝晶的影响及其作用机理研究

- 背景介绍
- 研究方法
- 研究成果

*Zheng\* et al, J. Energy Chem. 2023*

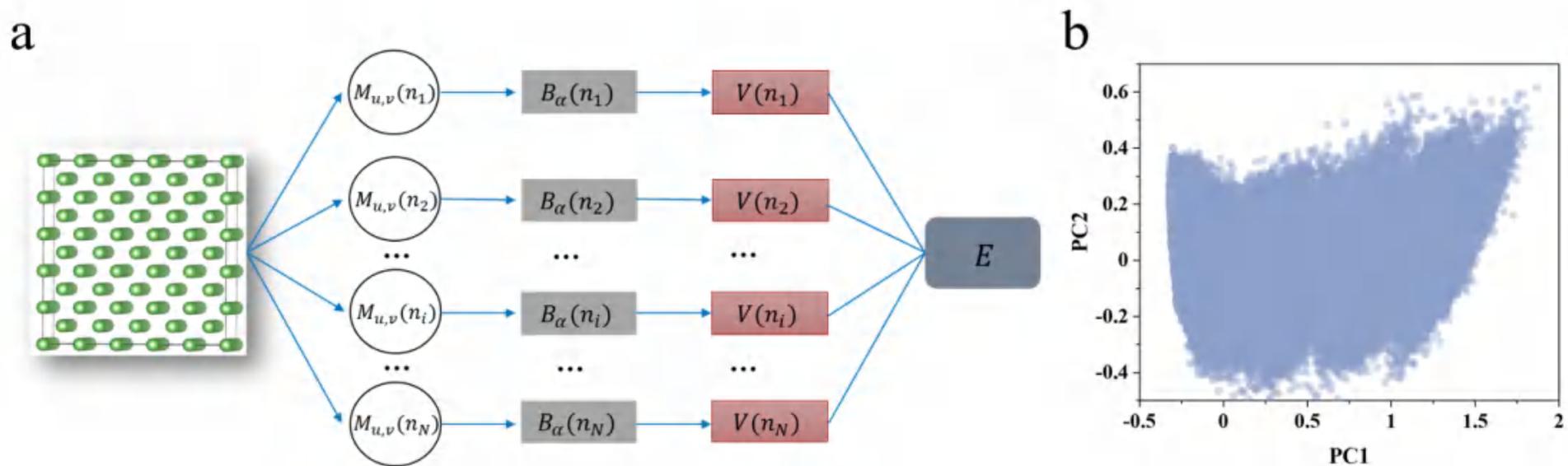
# 研究背景



Zhang et al., Adv. Energy Mater. 2021, 11, 2003416

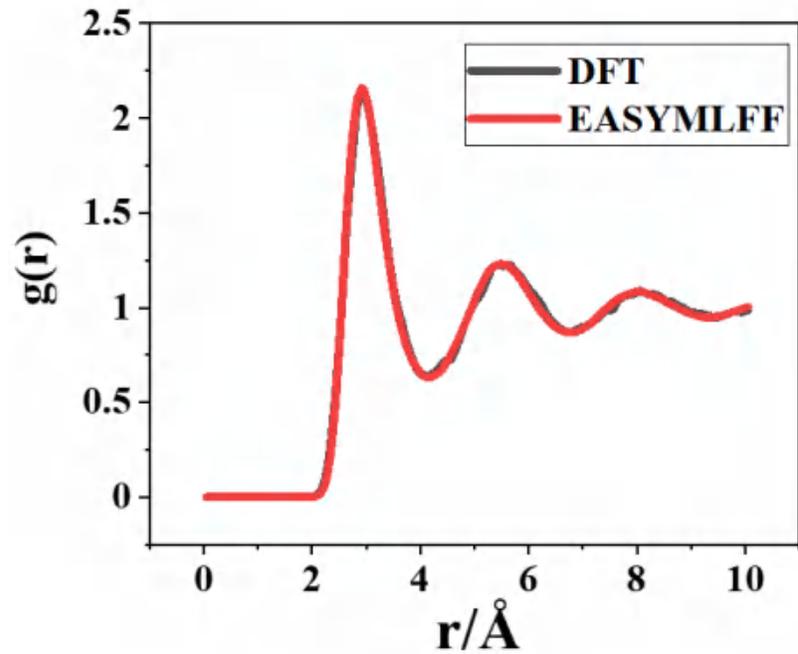
- 实验上发现施加外压后锂枝晶减少，锂金属电池性能提升；
- 在原子尺度上，外压是如何影响锂枝晶的？
- 压强对金属锂的自修复有何影响？

# 研究方法

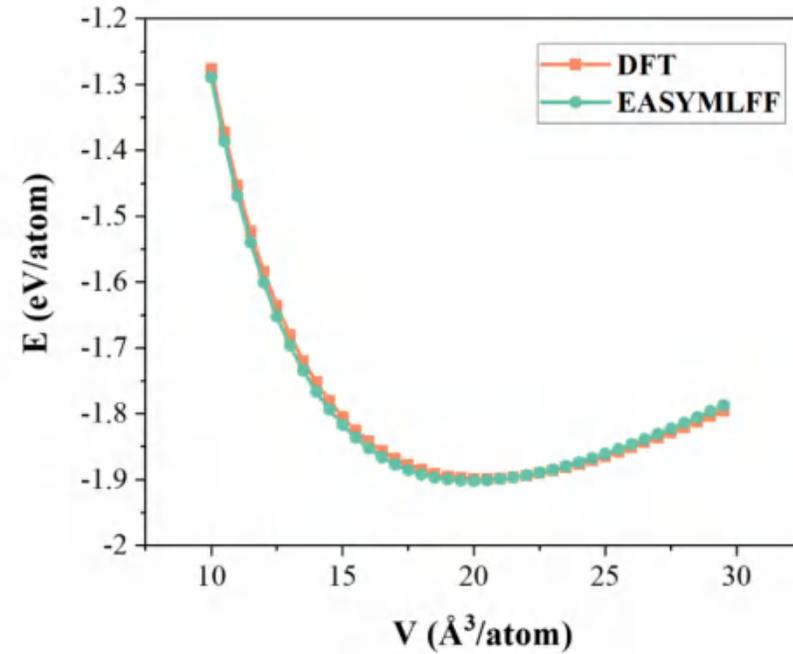


- 基于MTP模型构建机器学习势场，使用降维方法可视化特征空间

# 势场测试

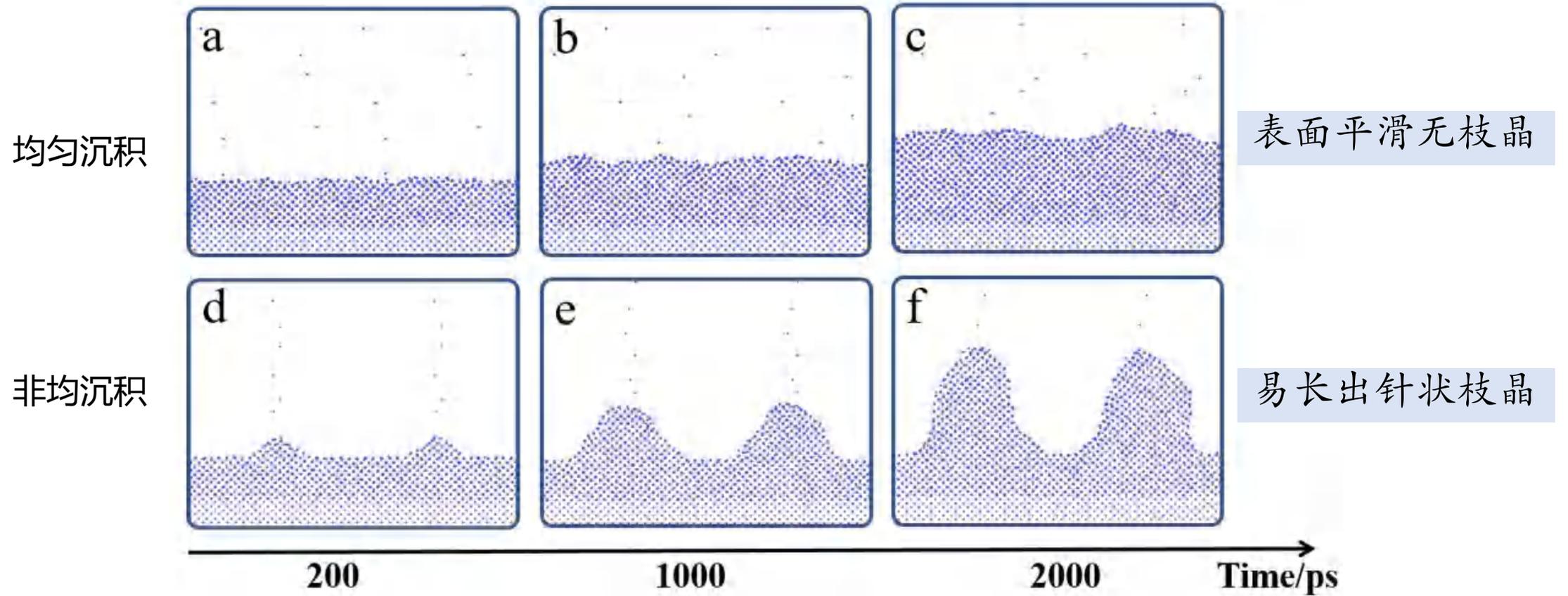


径向分布函数

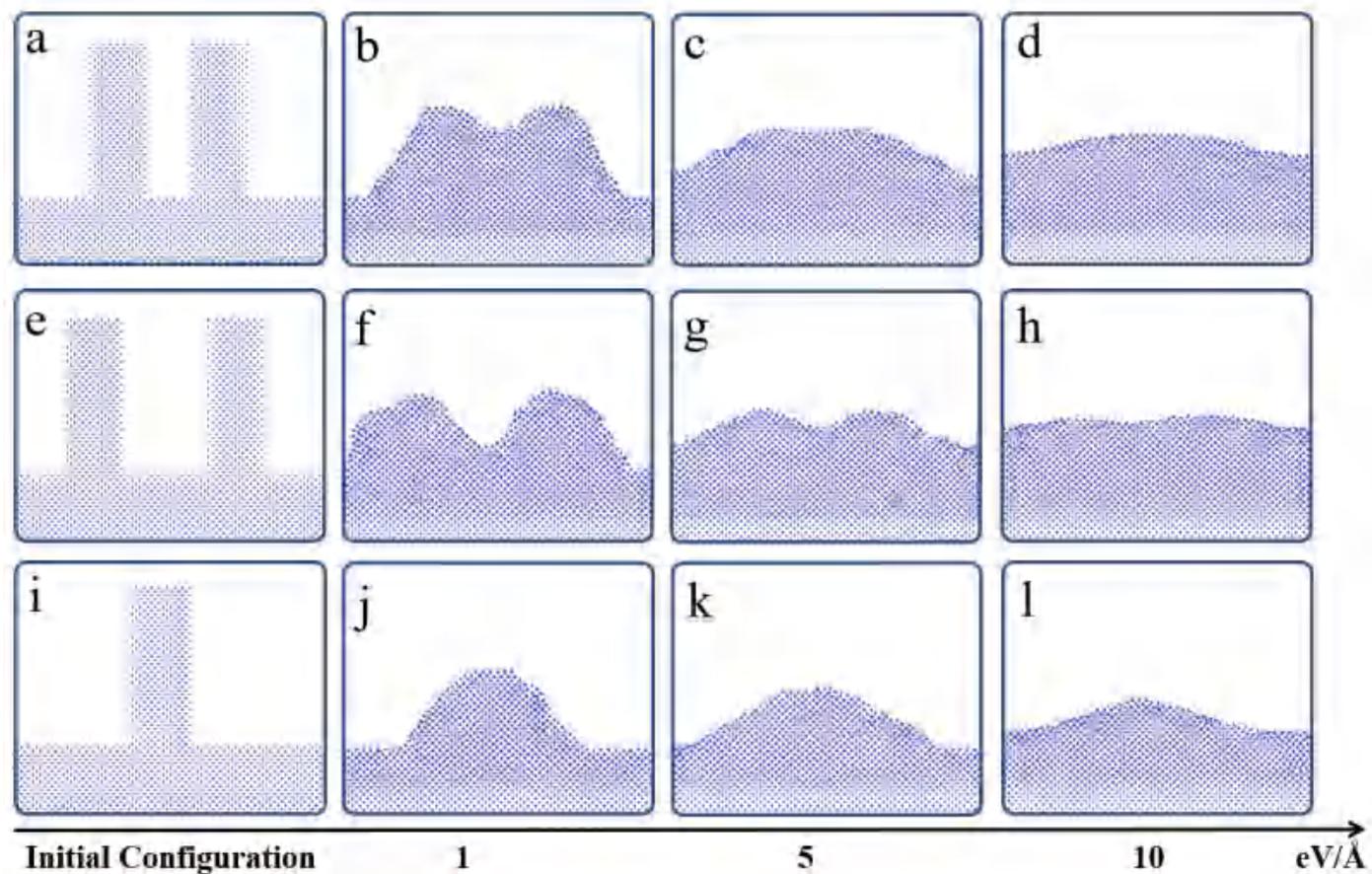


晶胞缩放下的能量精度

# 锂沉积模拟

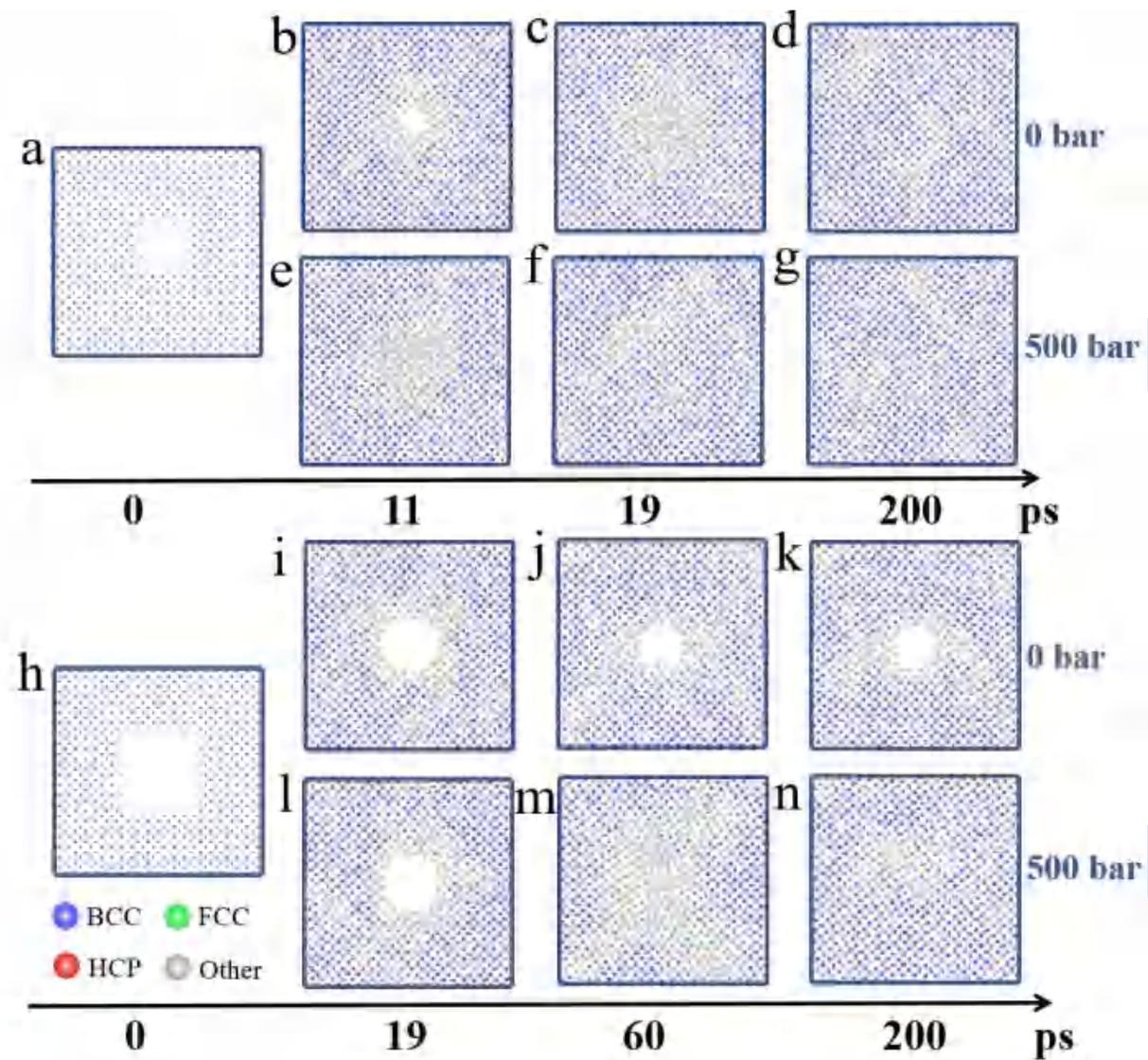


# 加压对锂枝晶的影响



- 随着外部压力增大，枝晶加速融合，表面变得平滑

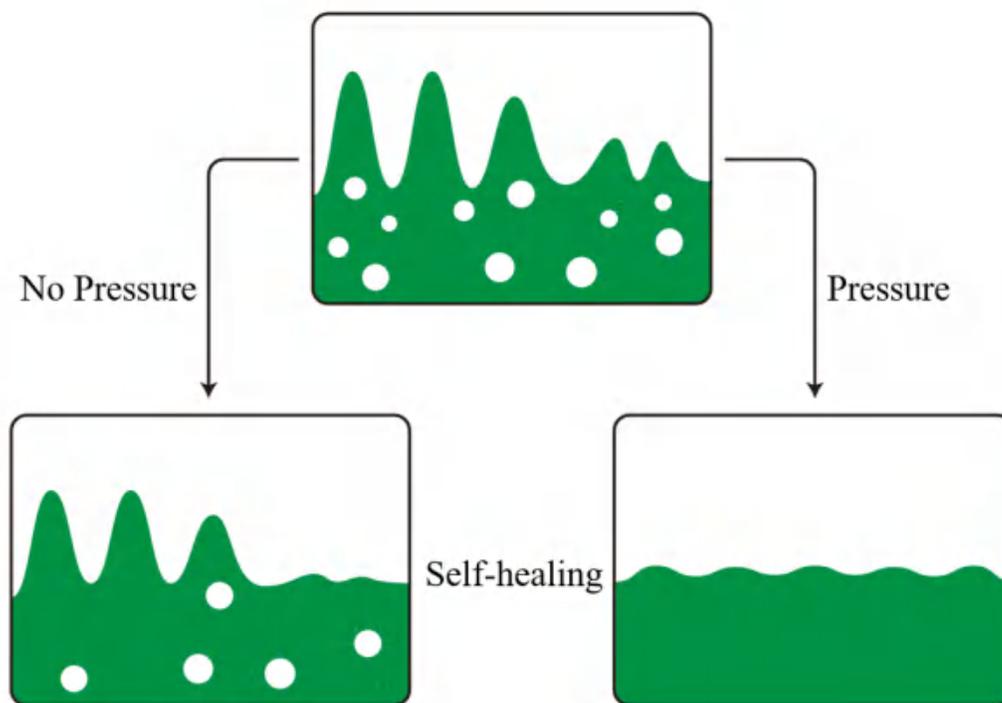
# 加压对锂自愈的影响



加压后更快愈合

加压后得以愈合

# 加压与锂自愈机理



- 加压可以加速/促进锂自愈，使本来难以自愈的缺陷和枝晶愈合变平

# 致谢



CATL 宁德时代



EACOMP 屹良

谢谢大家!