科学通报 2026 年 第 71 卷 第 10 期: 2092 ~ 2103
固态电解质专题 进 展
《中国科学》杂志社
SCIENCE CHINA PRESS

机器学习辅助的固体电解质离子输运机制研究进展

徐靖卓, 陈熙卓, 庞越鹏*, 郑时有*

上海理工大学材料与化学学院, 上海 200093

* 联系人, E-mail: pangyp@usst.edu.cn; syzheng@usst.edu.cn

2025-03-06 收稿, 2025-05-22 修回, 2025-07-11 接受, 2025-07-31 网络版发表
国家自然科学基金(52171218)资助

摘要 离子电导率是固体电解质的关键指标, 涉及材料结构的对称性、空隙率、化学键等众多参数. 因此, 新型固体电解质的开发存在着实验试错成本高, 理论计算难度大等问题. 新兴的机器学习方法通过对大量数据的分析, 能够挖掘出深层构效关系, 可为固体电解质的设计提供新思路. 本文综述了机器学习在固体电解质离子输运机制研究领域的应用成果, 首先介绍了固体电解质的典型材料体系及已知构效关系, 重点分析了不同体系离子输运机制的异同点; 随后简述了机器学习赋能材料科学研究的范式, 包括主要算法、材料数据库、结构描述符等; 最后总结了机器学习在固体电解质设计中的应用, 主要从实验数据驱动和理论计算驱动这两个方面展开分析. 本文有助于推动固体电解质和机器学习的交叉融合研究.

关键词 固体电解质, 机器学习, 离子电导率, 离子输运机制

全固态电池有望成为下一代电化学储能装置, 固体电解质作为其核心组成部分已成为研究者们重点关注的方向, 其离子输运性能直接决定了电池的能量密度、循环寿命及安全性. 固体电解质材料中的离子传导性能本质上受多尺度结构特性的影响, 这些特性包括原子尺度的晶格骨架本征构型(例如元素化学配位模式、离子位点分布规律), 介观尺度的离子通道空间排布(例如开放度、跨晶界连通度), 以及缺陷的种类和密度(如非晶相占比、界面极化层特性), 各维度结构参数通过构建差异化的能量势垒分布, 共同主导载流子的定向迁移动力学过程[1,2]. 固体电解质材料的离子输运性能的优化受限于繁琐的多元变量耦合系统, 且传统的实验试错法以及基于单一尺度的理论模拟方法在应对高维变量体系时, 其预测模型与实际性能间普遍存在显著差异, 难以实现高性能材料的精准筛选与结构设计. 因此, 开发新技术以推动全固态电池从实验室小批量生产向企业规模化应用转变, 已成为当前的研究热点[3].

材料科学领域的研究已通过机器学习技术成功建立了精准的结构-性能映射模型. 这些模型不仅能快速预测材料性质, 还能从本质上更深入地解析材料性能演化的内在规律[4,5]. 在固体电解质这一前沿领域, 目前已有不少机器学习相关的实验和计算论文[6,7]. 本文主要基于固体电解质晶体结构及其离子输运机制, 结合机器学习技术在固体电解质研究中的典型应用, 着重探讨了数据驱动的材料数据库构建与预测模型开发、理论计算数据与机器学习的深度融合、跨材料体系的通用性与可扩展性验证, 最后展望机器学习在固体电解质研究中的未来发展方向.

1 固体电解质材料与机器学习技术的相关概述

固体电解质材料属于新型功能材料, 其核心指标是离子输运性能. 不同类型的固体电解质材料体系因

引用格式: 徐靖卓, 陈熙卓, 庞越鹏, 等. 机器学习辅助的固体电解质离子输运机制研究进展. 科学通报, 2026, 71: 2092–2103
Xu J, Chen X, Pang Y, et al. Ion transport mechanisms in solid electrolytes assisted by machine learning (in Chinese). Chin Sci Bull, 2026, 71: 2092–2103, doi: 10.1360/CSB-2025-0249

© 2025《中国科学》杂志社

其晶体结构、化学组成及离子通道特性而呈现出截然不同的离子传导性能(表1)[8]. 新兴的机器学习技术使用计算机作为工具并模拟人类的学习方式, 能够基于大量数据解决复杂问题. 为了深入理解机器学习辅助的固体电解质离子输运机制研究, 本文首先简述两者的基本概念.

1.1 典型的固体电解质离子输运机制

固体电解质根据其化学组成可分为氧化物、硫化物、卤化物、氢化物及聚合物五大体系. 氧化物体系是最早开展系统研究的, 主要涵盖锂快离子导体结构(LISICON)结构(如$Li_{1+x}Al_xTi_{2-x}(PO_4)_3$)以及石榴石型(如$Li_7La_3Zr_2O_{12}$)等[9,10]. 此类材料通常具有高度对称的刚性稳定骨架, 离子扩散会在其骨架内存在的缺陷中进行. 硫化物体系(如Li_6PS_5Cl、$Li_{10}GeP_2S_{12}$)具有低剪切模量的晶格结构, 因而具有良好的离子传输性能, 这类柔性骨架提升了离子的迁移效率, 使得其室温离子电导率达到甚至媲美传统液体电解质的水平[11,12]. 近年来, 卤化物固体电解质(如Li_3InCl_6)凭借独特的晶格排列和空间群特征, 在保持高迁移速率的同时显著改善了电极、电解质界面的稳定性[13,14]. 氢化物固体电解质(如$Li_2B_{12}H_{12}$)由更轻质化的元素构成, 其高效的桨轮传输效应和对锂的稳定性使得氢化物体系脱颖而出[15]. 基于聚合物-盐复合体系的固体电解质(如PEO基、PAN基电解质), 该类固体电解质材料展现出优异的电极界面适配特性和较好的机械柔韧性, 但受限于较低的离子传输速度, 需要进一步优化[16].

无机固体电解质中的离子迁移主要依赖其周期性结构中存在的点缺陷, 包括基于肖特基缺陷的空位机制和基于弗兰克缺陷的间隙机制, 然而, 对于无机固体电解质的全面构效关系尚未完全明确, 目前的机制研究成果多仅适用于特定结构. $Li_{1+x}Al_xTi_{2-x}(PO_4)_3$和$Li_{10}GeP_2S_{12}$具有相似的$[PO_4]^{3-}$、$[PS_4]^{3-}$和$[GeS_4]^{4-}$阴离子, 具有无序的亚晶格结构, 产生大量的锂离子空位及间隙[17,18]. 在$Li_7La_3Zr_2O_{12}$中, 锂离子的传输主要通过间隙空间的四面体位置进行, 同时扩散速率与锂离子浓度呈正相关[19]. 在Li_6PS_5Cl中, 锂离子存在3种跃迁路径, 即笼内跳跃、笼间跳跃和相邻位点跳跃, 多种跃迁路径有利于锂离子的快速移动[20]. Li_3InCl_6晶体中的锂离子传输主要受到堆叠层错的影响, 堆叠层错破坏了锂离子迁移路径的各向同性, 在[101]方向形成优势迁移通道, 使锂离子在迁移过程中与相邻氯离子间形成更均匀的键长, 显著降低了锂离子迁移势垒[21]. $Li_2B_{12}H_{12}$的离子快速传导机制受结构、化学和动力学三个方面的影响. 在结构上, $Li_2B_{12}H_{12}$具有大量的空位和间隙, 可以有效减少阳离子的有序化倾向并让能量曲线平稳化; 在化学上, 锂离子的晶格按照阴离子的对称性进行排列, 但这种排列方式与晶格间隙位置并不兼容, 如此排列会降低缺陷的形成能从而更加方便锂离子在晶格中进行迁移; 在动力学上, 离子导电的桨轮效应会导致阴离子晶格的持续振动重排, 进而可以显著降低阳离子迁移所需要克服的动力学势垒[22]. 从头算分子动力学计算进一步揭示了无机固体电解质中, 锂离子主要通过协同迁移模式进行输运, 也就是多个离子同时跃迁至相邻的下一个位置来实现高通量的锂离子转移[23]. 聚合物固体电解质的离子传导主要是通过离子与聚合物链段运动耦合来实现的, 如(图1)所示[24]. 对于PEO-LiTFSI固体电解质, 聚环氧乙烷(PEO)中的醚氧基可与锂离子形成配位键, 由于PEO中醚氧基的分布呈螺旋状且存在局部链段弛豫, 配位的锂离子可以在不同醚氧基之间跳跃迁移[25].

当前固体电解质体系的离子迁移机制的理论框架

表 1 固体电解质的主要类型及性质

Table 1 Types and properties of solid electrolytes

类型	示例[10]	25°C下的离子电导率(S cm^{-1})	其他特点
氧化物固体电解质	$Li_{1+x}Al_xTi_{2-x}(PO_4)_3$	10^{-3}~10^{-4}	高电位稳定、低电位不稳定、电极接触差
	$Li_7La_3Zr_2O_{12}$	10^{-3}~10^{-4}	电化学稳定性好、电极接触差
硫化物固体电解质	Li_6PS_5Cl	10^{-2}~10^{-3}	电极界面层稳定、本征电化学稳定性差
	$Li_{10}GeP_2S_{12}$	10^{-1}~10^{-2}	电化学稳定性差
卤化物固体电解质	Li_3InCl_6	10^{-3}~10^{-4}	高电位稳定、低电位不稳定
硼氢化物固体电解质	$Li_2B_{12}H_{12}$	10^{-4}~10^{-5}	低电位稳定、高电位不稳定
聚合物固体电解质	聚环氧乙烷-双三氟甲磺酰亚胺锂(PEO-LiTFSI)	10^{-3}~10^{-4}	机械性能好、电极接触好、热稳定性差、电化学稳定性差

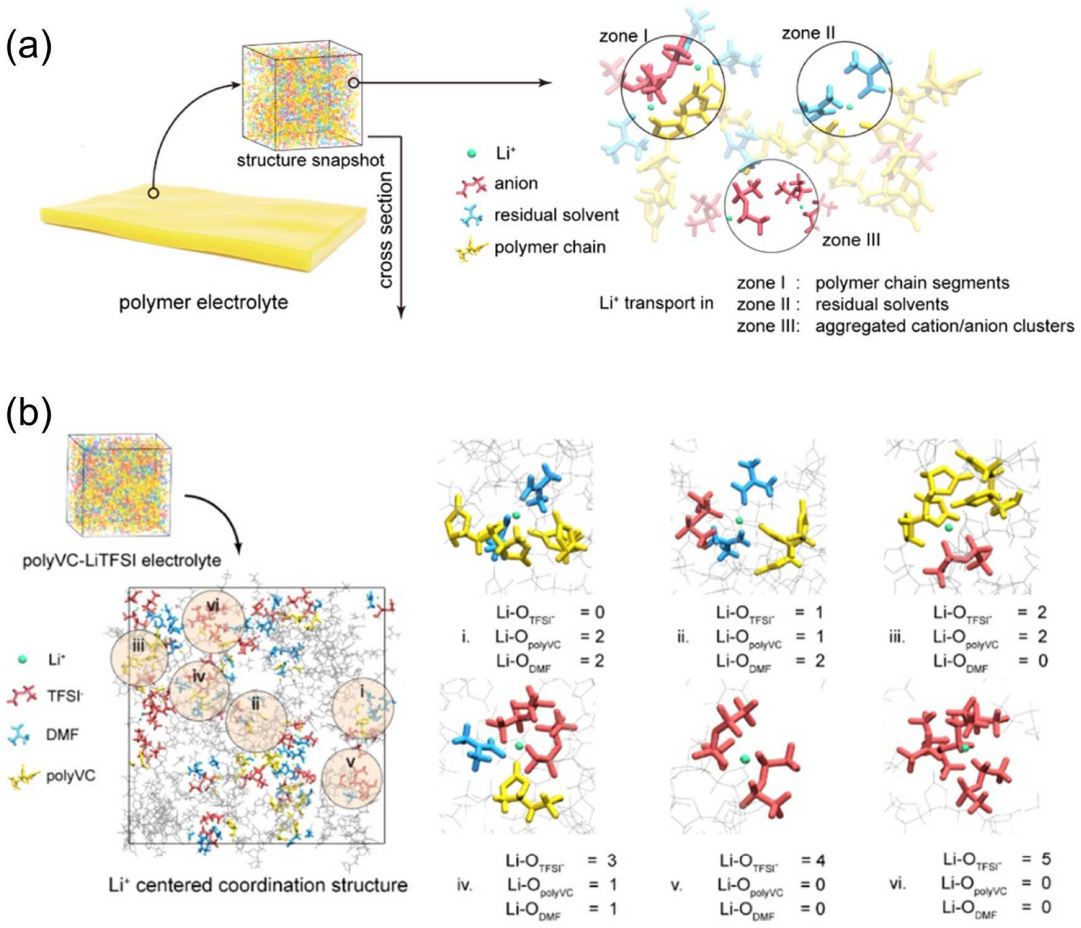


图 1 (网络版彩色)聚合物固体电解质中[24]. (a) 离子迁移示意图; (b) 离子配位环境示意图

Figure 1 (Color online) Polymer solid electrolyte[24]. (a) Schematic of ion migration; (b) schematic of ion coordination environment

尚未完善，基于单因素调控的实验范式难以全面揭示构效关系，而高精度分子模拟因其高昂的计算成本严重制约了高通量材料筛选能力，尤其在处理微观局域结构的动态演变及跨尺度耦合效应时存在解析盲区，致使无法筛选设计出能够满足实用要求的高性能固体电解质.

1.2 机器学习辅助的材料研究范式

机器学习旨在让计算机借助大量数据进行自主学习、不断迭代优化，从而发现数据中人类难以察觉的内在关联模式, 并利用这些模式进行预测或决策. 时至今日，机器学习已经深度应用在各种计算化学与计算材料方法发展中，借助机器学习对大量的材料特征数据进行分析，为能源化学与能源材料研究带来全新的机遇, 有望建立数据驱动的新研究范式[26].

算法作为机器学习的核心部分，其选择直接影响材料性质预测的准确性，Schleder等人[27]对材料科学领域使用的机器学习算法进行了分类总结(图2(a))，其中，监督学习方法可以找到结构特征与性能之间的数学关联；支持向量机借助核函数将数据映射到高维空间来处理材料数据中的非线性关系；随机森林通过构建多个决策树分析预测结果，在保证预测稳定性的同时显著提升了模型的泛化性能及噪声抑制能力. 神经网络中的卷积神经网络可以很好地处理材料晶体结构的周期性特征，而图神经网络则可以直接以原子间连接关系作为输入，从而在进行模型建立时能够保留材料更多的本征结构信息[28,29].

机器学习离不开全面、准确的数据，因此材料数据库中丰富的信息是推动机器学习在材料科学中应用创新的核心力量[30]. 当前研究领域已构建了以Materials Project、AFLOW和OQMD为代表的材料信息学数据库(表2)，这些数据库已逐步成为材料科学领域的宝

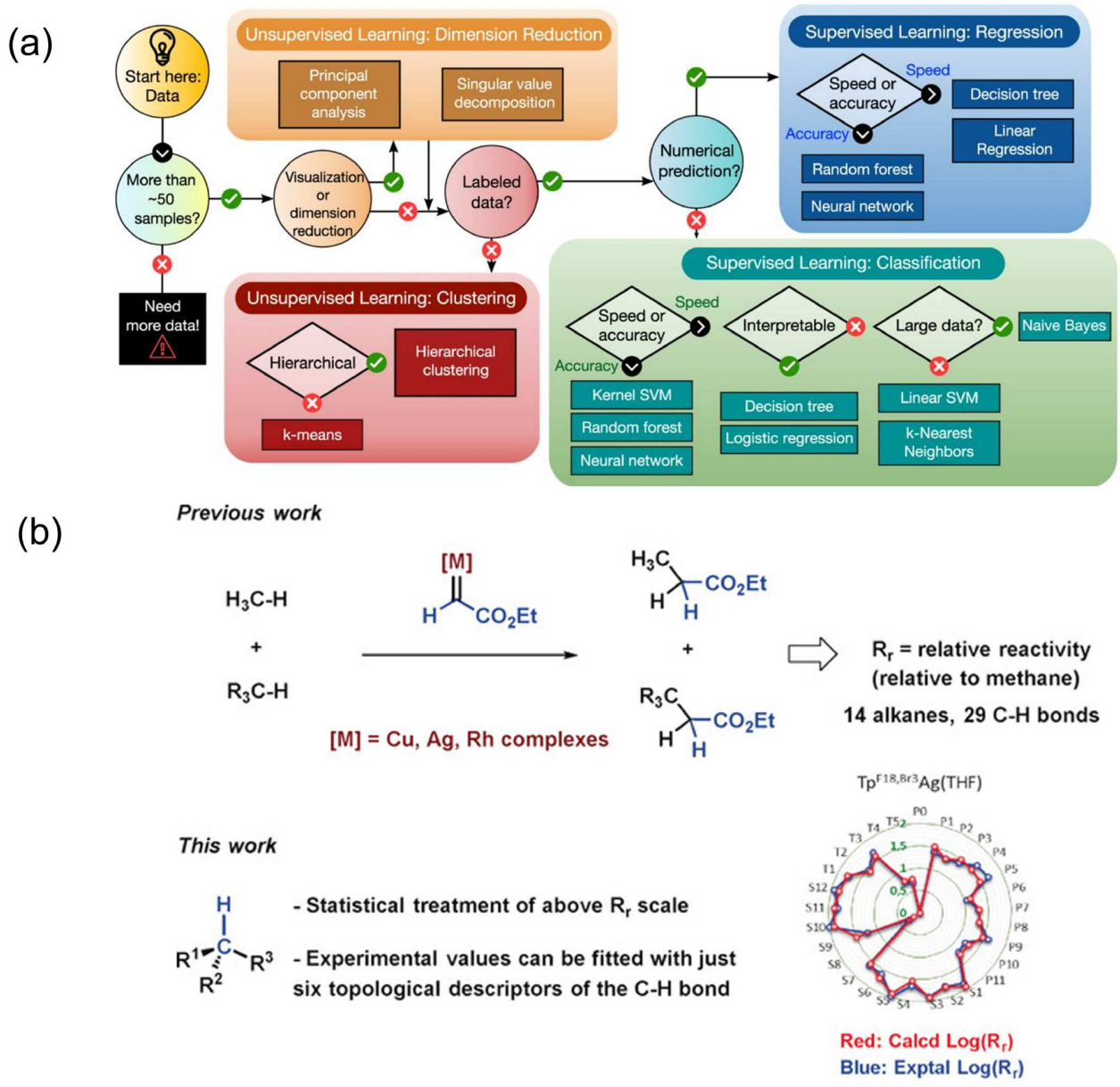


图 2 (网络版彩色)机器学习的两个核心组成: 算法与描述符. (a) 机器学习算法使用示意图[27]; (b) 描述符库构建流程示意图[32]

Figure 2 (Color online) The two core components of machine learning: algorithms and descriptors. (a) Machine learning algorithms and usage diagrams[27]; (b) schematic diagram of descriptor library construction process[32]

贵财富[31], 它们经过研究者们前赴后继的努力积累了大量的材料晶体结构数据以及性能参数, 并通过先进的可视化、信息检索工具以及标准化数据存储协议与开放接口协议供研究人员访问和利用.

过去十年来, 机器学习模型在材料科学中的应用一直是广泛研究的主题, 其核心在于能够将材料结构编码成计算机可以理解的描述符, 借助结构特征与目标属性之间的密切关联来保证对新型材料的可靠预测. 描述符的构建直接影响机器学习模型的预测精度与物理解释能力, 这便要求在系统化地构建描述符库的同时, 合理选择合适的描述符来准确表示材料特性(图2(b))[32]. 下面以固体电解质的离子传导为例, 具体介绍描述符的构建与选择.

离子传导相关的结构描述符主要包括几何描述符、电子结构描述符和化学成分描述符, 分别代表材料的空间构型、电子分布以及化学性质(表3)[33], 这类

表 2 材料数据库平台

Table 2 Material database platform

数据库名称[31]	收录化合物数量	覆盖数据类型	专注领域
Materials Project	>144000	晶体结构、能带结构、形成能、离子导电率、活化能等	广泛(包括固体电解质)
AFLOW	>3000000	晶体结构、物理性质、电子性质	广泛(包括固体电解质)
Open Quantum Materials Database (OQMD)	>500000	晶体结构、形成能、相稳定性	广泛(包括固体电解质)
Citrine Informatics	N/A	晶体结构、物理性质、电子性质、离子导电率等	广泛(包括固体电解质)
Materials Genome Initiative (MGI) – Solid Electrolyte Data Sets	N/A	晶体结构、离子导电率、活化能等	固体电解质
Inorganic Crystal Structure Database (ICSD)	>200000	晶体结构	无机材料
NREL's Battery Materials Database	N/A	离子导电率、稳定性、兼容性等	电池材料
Harvard Clean Energy Project Database	N/A	预测结构、形成能、电子性质	清洁能源材料
C2DB(Computational 2D Materials Database)	>6000	电子性质、结构性质、热性质	2D材料

表 3 与离子传导性质相关的描述符

Table 3 Descriptors related to ion conduction properties

描述符类别[33]	具体描述符	描述符说明	与离子传导相关性
几何描述符	配位环境	表征原子的局部配位环境, 通过Voronoi多面体分析或配位数统计	影响离子迁移路径的空间特征
	键长分布	原子之间键长的分布情况	
	键角分布	原子之间键角的分布情况	
	空间体积	单位体积内的空间体积特征	
	原子密度	单位体积内的原子数量	
	空隙率	材料中空隙的比例	
电子结构描述符	能带结构	材料的能带分布情况	影响离子的局部电子环境和键合特征
	态密度分布	材料的态密度(DOS)分布	
	电荷分布	材料中电子的空间分布情况	
化学成分描述符	元素本征性质	元素的电负性、原子半径等本征化学属性	影响离子与其他原子/离子的相互作用
	化学键类型和强度	不同类型的化学键及其强度	
	组分配比	不同元素或化合物在材料中的比例关系	

描述符以其计算便捷性和明确的物理化学内涵, 为构建数据驱动的材料性能预测模型提供了可解释的理论框架. 几何描述符涵盖原子配位环境、键长键角以及晶格参数[34]. 从微观尺度刻画了原子的局部配位环境, 进而可以通过Voronoi面来指定空间上相邻的原子, 从而减少对精确几何信息的依赖. 然后将构建的晶体无向图分割成几个较小的子图. 在宏观层面, 从整体角度勾勒出材料的构建特征, 如原子密度和单位体积中的空隙率等参数[35]. 电子结构描述符作为分析离子电导率最重要的描述因素, 可以通过定量表征材料的能带特征、电荷分布及轨道杂化程度来揭示离子迁移的活化能垒与扩散路径. 化学成分描述符则侧重于从化学角度描绘材料特征, 通过元素的本征性质(如电负性、原子半径等)、键合模式与键能参数, 以及组分间化学计量比等维度构建材料特征空间.

为了从海量的描述符中提取关键信息, 需要特征工程筛选, 以进一步提高模型的预测能力. 特征工程通常包括数据预处理、特征选择、特征提取和特征构建这几个过程. 特征工程的目标是设计合乎逻辑且详尽的描述符: 一个理想的描述符体系应当能够从多个角度捕捉材料结构的本质特征; 使用合适的特征工程算法, 例如套索回归(LASSO)、随机森林等, 识别出那些与目标性质存在显著相关性的关键描述符[36], 再通过组合变换和降维处理, 形成新的复合特征参数, 从而更全面地刻画材料的结构特性; 描述符的选择也同样需要在多个目标之间建立起最为合适的纽带, 优秀的描

述符不仅要能准确刻画不同类型材料的结构特征，更要为模型结果提供详尽且完备的可解释性[37].

2 机器学习在固体电解质离子输运研究中的应用

据已有研究可知，离子电导率的数值特征是表征固体电解质离子输运能力的关键性能参数. 近年来, 机器学习技术在加速模拟复杂物理化学过程、解析电池内部构效关系时发挥突出作用，显著提升了离子电导率预测效率，例如通过晶体结构参数(如原子电负性、晶胞体积等)，结合梯度提升回归、随机森林等算法构建高精度预测模型，已实现由关键结构因素对离子迁移的调控机制的系统解析[38,39]. 特别是, 机器学习通过分析多尺度结构与动态数据，能够验证和完善空位迁移、协同扩散、链段运动等多种离子输运机制的理论假设, 揭示其微观作用规律, 为特定材料体系的设计提供理论指导. 该部分内容包含两个方面: 一是通过晶体结构描述符建立材料组成与离子传输特性之间的数学关联模型；二是利用数据挖掘技术筛选关键特征参数揭示关键影响因素的作用机制. 深度讨论实验数据、理论计算数据和机器学习技术的融合创新[40].

2.1 基于实验数据的机器学习分析

实验是研究固体电解质的可靠手段，但受限于缺少标准实验流程，实验数据集常面临样本量有限、测量噪声及条件不一致等局限性，影响机器学习模型的泛化能力与预测精度. 通过数据清洗、标准化预处理及结合理论计算补充数据等方式可以解决以上问题, 并进一步借助机器学习来分析实验数据集，提升模型在固体电解质性能预测中的可靠性(图3(a)).

不同算法之间的比较可以更好地发现模型选择与数据特征的适配性规律，Pereznieto等人[41]利用已报道的钠离子固体电解质实验工作，建立了基于随机森林算法的机器学习预测模型，该研究从文献中收集了160种钠离子电解质的5619个温度实验数据点，利用Magpie工具为初始数据集提供了总共145个特征, 再通过方差分析和相关性筛选去除单调和线性相关的特征. 训练中对比了包括自适应增强、LASSO等五种机器学习算法的性能，通过20折交叉验证和独立验证集的评估, 最终选择了表现最优的随机森林模型. 该模型对来自ICSD数据库的25000多种化合物进行了筛选，以便获得稳定且高导电性的含钠化合物. 通过密度泛函理论计算对预测结果进行验证，发现高电导率材料如$NaPb_3$的低声子带中心和活化能与预测结果高度吻合.

Sendek团队[42]通过一种新型的大规模计算筛选方法筛选了12831种含锂晶体固体，以寻找结构和化学稳定性高、电子电导率低且成本低的材料，核心目的在于确定有前途的锂离子电池固体电解质候选材料. 研究首先将可接受的最小带隙设定为1 eV，并舍弃了所有带隙更小的材料、结构稳定性强、氧化电压上限为4 V或更高等关键指标，候选出了317种材料，减少了92.2%. 随后，他们编制了一个包含40种晶体结构的训练集，并报告了文献中通过实验测得的离子电导率值, 从晶体结构中提取最小锂阴离子分离距离、晶体的局部原子排列和化学性质等20项微观特征并利用逻辑回归建立了一个数据驱动的离子电导率分类模型. 模型通过交叉验证证明其达到90%准确率，最终筛选出21种高潜力材料，其中部分材料的结构特征与已知高离子电导率材料极度吻合.

Ma等人[43]利用梯度提升回归优化机器学习模型来预测石榴石固体电解质的离子电导率，研究团队构建了一个包含398个来自多个开源数据库的数据点，这些数据点涵盖了电负性、容忍因子、电离能和离子电导率等实验数据. 模型构建阶段采用梯度提升算法, 精细设计的10折交叉验证和超参数优化使模型在训练与测试集上达到了0.9的相关系数，并成功揭示了八面体位点的元素占据率与离子电导率呈现显著负向关联.

通过对特征工程的精细处理，提高预测精度的物理化学描述符可以被深挖出来，这一发现凸显出主动学习相对于传统的“试错法”而言，在高维度材料设计空间中可以显著降低实验成本. Verduzco等人[44]采用主动学习策略的掺杂$Li_7La_3Zr_2O_{12}$(LLZO)固体电解质设计方法. 该研究收集了188组实验测得的LLZO锂离子电导率数据, 并依据严格标准进行数据清洗: 排除非立方相结构、烧结温度低于900 ℃且测试温度在18~32 ℃范围的数据, 最终筛选出100组有效数据. 在机器学习建模中，研究人员发现Magpie包含可从成分中轻松获取的信息，如价轨道信息、元素分数和离子特性, 这类信息为随机森林(RF)和人工神经网络(ANN)预测模型提供有效数据支撑. 结果显示, RF模型在测试集上实现了0.92×10^{-4} S/cm的平均绝对误差, 略优于ANN的1.09×10^{-4} S/cm.

为找到不同材料体系间的通用性规律，Xu等人[45]提出了基于机器学习的跨域分类模型，用来解决钠快

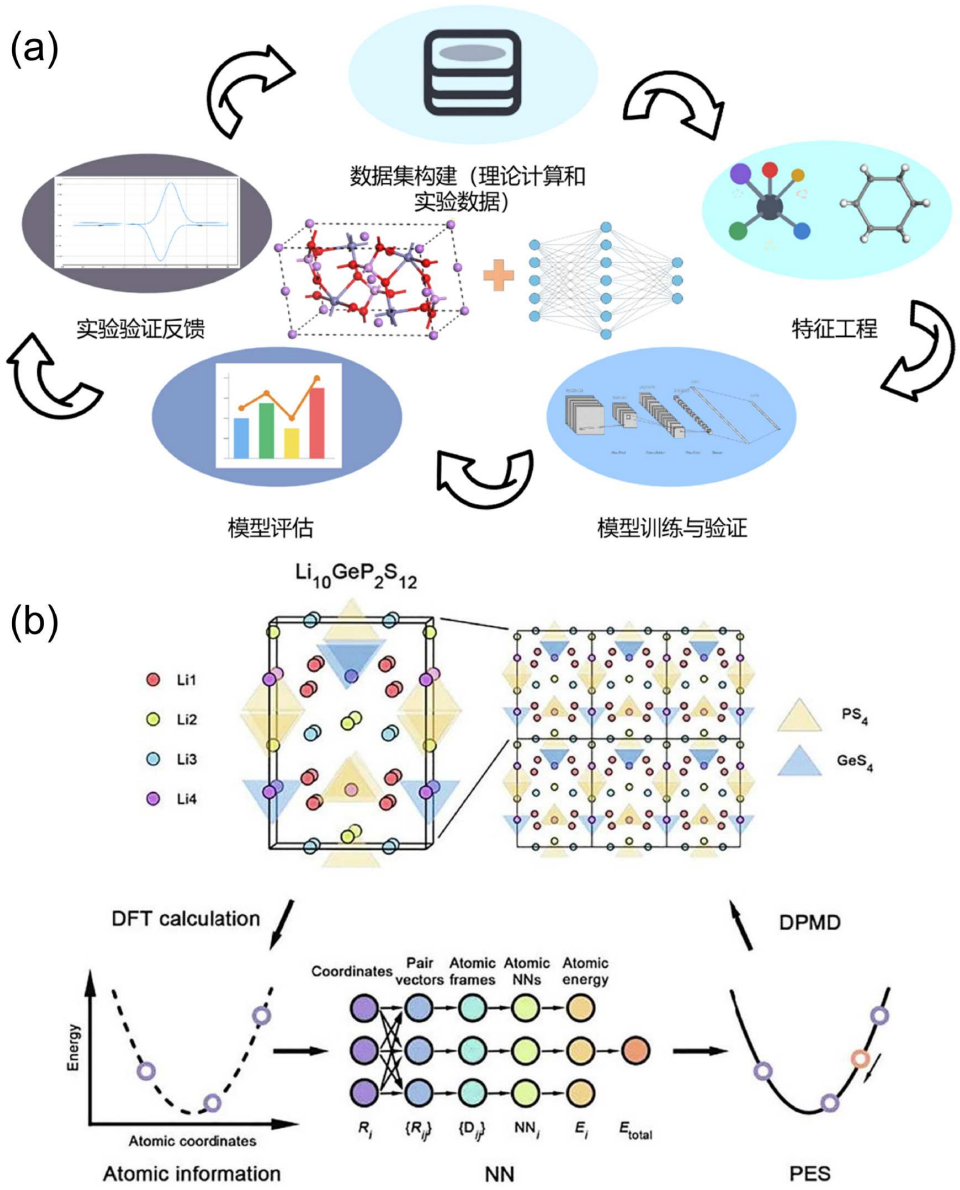


图 3 (网络版彩色)机器学习在固体电解质研究中的范式与应用. (a) 机器学习在固体电解质设计中的工作流程; (b) 基于势函数建模的固体电解质结构与离子迁移开发流程图[51]

Figure 3 (Color online) Schematic diagrams of machine learning-assisted solid electrolyte research workflows. (a) Machine learning workflow in solid electrolyte design; (b) flowchart of solid electrolyte structure and ion migration development based on potential function modeling[51]

离子导体(NASICON)和LISICON的体相离子电导率预测问题. 该研究采用逻辑回归算法, 以10^{-6} S/cm为阈值区分高、低离子电导率材料. 模型基于70个NASICON离子电导率样本数据, 采用简单的元素性质作为特征值, 并开展了特征工程进行特征筛选, 将考虑的特征数量从47个减少到7个, 减少幅度超过83%, 该模型能够有效区分具有不同导电性能的超离子导体, 验证准确率超过84%. 研究结果证明了机器学习的实用性, 它通过使用现有数据示例和简单的列表或计算特征, 为初步筛选固体电解质的潜在候选物提供了机会.

2.2 基于理论计算数据的机器学习分析

由于固体电解质结构表征和离子导电率测试实验周期长, 数据有限, 且对样品质量和测试条件较为敏感, 为了获取大量有效结构和性能数据, 研究者将理论计算结果引入到机器学习进行分析. 目前, 基于理论计算

数据的机器学习分析主要有两个方向：第一是针对大量的材料进行对比和筛选，高效寻找出具有潜在高离子电导率的固体电解质；第二是分析同一材料在大量瞬时状态下的相互作用, 实现快速分子动力学模拟[46].

He等人[47]开发了系统化的高通量筛选平台，将结构数据库与多层次计算工作流相结合(图S1), 该平台整合的晶体结构的Voronoi分解分析(CAVD)结构表征与键价位能(BVSE)输运路径分析等功能模块已实现从材料结构到性能预测的全流程自动化分析，研究人员结合了多种计算方法，系统地分析和筛选具有优良离子传输性能的材料. 流程从结构数据库开始, 用户先在系统中查询需要的结构，这些结构将经过分层计算将经验CAVD和BVSE计算结合起来. 首先通过Voronoi分解从晶体结构中的原子间获得间隙网络，然后可以通过将移动离子的半径与间隙网络中的间隙和瓶颈的半径进行比较来构建离子传输网络. 进一步层次化计算结合CAVD和BVSE结果，寻找有序结构中离子迁移路径的端点. 利用CAVD计算出的离子迁移网络被映射为一个无向图，BVSE值用于描述这些顶点的特征，并排除高能量的顶点, 从而得到更可靠的离子迁移网络. 该平台提供开放的网络接口，用户可以访问数据库和离子传输特性计算工具，用户可以完成结构的批量计算和筛选. 数据可用于机器学习算法, 预测和优化材料性能.

Zhao等人[48]以立方锂离子为研究对象，构建了50种不同结构的固体电解质数据集, 并通过BVSE方法计算了锂离子扩散能垒. 进一步使用了晶体结构分层解码方法提取了多个结构特征，包括离子半径、锂含量、晶胞体积、锂原子间距等, 这些特征易于获取, 并不依赖于复杂的计算或实验方法. 基于上述工作，Zhao等人[48]采用了偏最小二乘分析，建立了基于晶体结构分层编码描述符的机器学习框架，用于预测高离子电导率和低活化能的固体电解质. 通过整合离子传导环境的全局和局部效应信息，构建了用于Li^+传导的通用的描述符，包括成分、结构、传导途径、离子分布和特殊离子. 此外, 通过投影中的变量重要性方法显示了全局和局部Li^+传导环境的综合影响，特别是阴离子大小以及与阴离子位点紊乱相关的结构变化，展示了促进先进固体电解质合理设计的巨大潜力.

分子动力学模拟是进行分析离子输运性质预测和机制解析的主要工具. 经典分子动力学模拟通过采用固定形式的数学方程描述原子间相互作用；从头算分子动力学模拟基于量子力学原理，通过求解薛定谔方程获取原子间势函数，通常需依赖预先完成的从头算分子动力学模拟数据完成势函数参数训练，其适用性局限于同类型材料体系；机器学习分子动力学模拟方法则结合了两者的优势，其特点在于不需要提前构建完整势函数就可以进行机器学习分子动力学模拟计算, 能够更好地保持从头算分子动力学精度以及经典分子动力学的计算速度, 实现计算精度与效率的平衡优化.

Xie等人[49]研究了机器学习在分析PEO-LiTFSI等聚合物电解质中链段运动对锂离子输运的贡献. 他们开发了一种名为图动态网络的无监督学习方法，该方法整合了图卷积神经网络，旨在从分子动力学模拟数据中深入理解原子尺度的动力学过程. 在应用于PEO-LiTFSI固体聚合物电解质体系时，图动态网络模型通过对分子动力学轨迹数据的学习，成功识别出锂离子存在的四种主要溶剂化环境状态，并揭示了这些状态之间的动态转变机制与弛豫过程. 进一步的分析表明, 锂离子的传导行为主要源于在相同溶剂化状态内部的迁移，并且这种迁移与聚合物链的链段运动表现出强烈的耦合效应，这与无机固体电解质中的离子跳跃机制有所不同.

密度泛函理论计算首先提供高精度的原子信息, 为模型训练建立可靠基础, 再结合神经网络模型采用包含坐标向量、原子配对和原子神经网络的多层架构, 能够准确描述原子间相互作用并预测体系势能面[50]. 以$Li_{10}GeP_2S_{12}$为例(图3(b)), 深度势分子动力学模拟通过结合深度神经网络和分子动力学方法，建立了一个高效且精确的计算框架[51]. 此研究通过深度势分子动力学分析锂离子概率密度、径向分布函数和跳跃频率等特征, 该方法验证了协同扩散在低温和高温下均主导锂离子输运的理论假设, 并细化了高温下协同扩散各向异性减弱、停留时间缩短的动态规律. 这些结果不仅确认了协同扩散的活化能与已有密度泛函理论计算的一致性, 还揭示了不同温度下协同模式的统计行为, 为优化硫化物电解质的离子输运路径提供了理论支持.

在包含可旋转阴离子团簇的固体电解质中桨轮效应被认为是促进离子迁移最主要的影响机制. 传统的第一性原理分子动力学模拟由于计算成本的限制，难以在室温下得到足够长时间的阴离子旋转事件及其对阳离子迁移的影响, 往往依赖于高温外推, 这可能导致对室温条件下的误判. 新兴的机器学习分子动力学凭借其接近第一性原理的精度和大幅提升的计算效率, 为深入探究此类复杂动力学过程提供了有力工具. 例

如, 在对硫化物电解质(如$Li_7P_3S_{11}$)和氢化物电解质(如$Li_2B_{12}H_{12}$)的研究中, 机器学习分子动力学模拟被成功应用于追踪微秒级(μs)时间尺度上$[PS_4]^{3-}$或$[B_{12}H_{12}]^{2-}$等阴离子团簇的旋转动力学[52,53]. 研究在成功量化阴离子旋转的频率、幅度和能量势垒的同时, 揭示了阴离子旋转与阳离子整体扩散之间的实际关联.

Hajibabaei等人[54]将实时机器学习与从头算分子动力学模拟结合, 提出了一种普适性势函数构建框架, 该框架模拟了数百种三元晶体, 并区分出22种速度最快的锂导体, 还通过迁移学习策略成功创建了三元(Li-P-S/Li-Sb-S)及四元(Li-Ge-P-S)复杂体系的通用电势, 证明了不同三元晶体的组合模型可直接用于复合四元晶体. 随着该技术被嵌入到VASP软件更新版本中, 其跨材料体系的计算潜力将加速释放, 推动机器学习分子动力学模拟方法在多元材料设计中的规模化应用.

3 结论与展望

随着机器学习方法广泛应用于各类功能材料研究, 基于现有理论计算与实验数据, 机器学习方法可以构建固体电解质结构特征与离子电导率之间的定量关系, 本综述便在此基础上阐述了机器学习在材料科学基础研究中的关键作用及其在固体电解质设计中的具体应用, 总结了一些和电解质材料应用相关的机器学习算法(表S1). 固体电解质的研究在结构特性和离子导电率的关联上取得了显著的进展, 而增强离子导电性能的关键被证明是三维连续传输网络, 柔性框架结构和合理的缺陷分布. 尤其是固体电解质材料, 如氧化物、硫化物、氢化物等, 在不同的材料体系中, 展现了独特的离子传输特性和结构优势, 提供了丰富的高性能电解质开发选择方案. 通过创新的研究范式结合高效挖掘材料数据库, 构建了精密的结构描述符, 实现了从材料筛选到微观机制解析的全流程智能化突破, 基于机器学习的性能预测模型展现了卓越的导电性能优化预测能力, 正推动固体电解质设计进入精准化和定向化研发的新阶段.

以实验数据或理论计算为基础的机器学习能够通过深度融合与动态交互, 形成一个可持续优化的研究闭环. 基于理论计算所构建的机器学习模型, 能够凭借高通量筛选, 对材料特定性能进行精准预测, 或对复杂构效关系进行深度解析的能力, 为后续的实验设计与材料合成提供极具价值的前瞻性指导. 而通过实验得到的新材料的实际物化性能参数则可以针对性地修正理论模型、调整计算方法中的近似条件与参数、优化机器学习模型的特征集与算法架构, 最终达到提升模型的预测精度的目的.

尽管机器学习已在固体电解质的研究与发现中展现出巨大的潜力并取得了显著进展, 但其应用仍旧存在局限性, 充分认识这些挑战对于推动该领域的发展至关重要. 一方面, 高质量、标准化的固体电解质实验数据往往规模有限、获取成本高昂且耗时. 不同文献来源的数据在实验条件、测量精度和报告规范上可能存在差异, 导致数据异构性和噪声问题, 直接影响模型的训练效果和可靠性 . 另一方面, 虽然理论计算能够生成大量结构化数据, 但其精度与真实物理化学体系的符合程度高度依赖于所选用的计算方法、近似水平及参数设置. 同时, 生成大规模高精度计算数据集本身的计算成本, 例如为机器学习力场提供训练数据所需的长时间从头算分子动力学模拟, 也是一个不容忽视的因素.

机器学习未来将进一步推动固体电解质在更多方面的实用化发展:

(1) 多属性协同筛选设计. 固体电解质的良好服役, 除了要求离子传输特性优良外,还必须兼顾一系列属性,如电化学稳定性和力学性质. 如何协同筛选和设计多项关键参数, 获得综合性能优异的固体电解质, 始终是科研人员的研究重点. 在完善针对固体电解质各项属性的综合模型后, 可进一步利用机器学习的多目标优化技术, 权衡其各项特性, 从而有望筛选出综合性能优越且均衡的固体电解质.

(2) 自动化与高通量实验. 机器学习的效果很大程度上依赖高质量的数据, 传统固体电解质的相关实验获取数据速度慢, 一致性差, 阻碍了机器学习在其中的应用. 整合机器学习技术与自动化高通量实验系统, 可以快速生成大量的高质量数据, 使研究者能够系统性地探索固体电解质材料体系, 有望发现常规实验手段易遗漏的新型材料构型与性能特征.

参考文献

1 Gu Z, Ma J, Zhu F, et al. Atomic-scale study clarifying the role of space-charge layers in a Li-ion-conducting solid electrolyte. Nat Commun, 2023,

14: 1632
2 Pang Y, Zhang D, Sun H, et al. Stable all-solid-state Na batteries enabled by *in situ* formed Na–B–H–F electrolyte. Adv Energy Mater, 2023, 13: 2301637
3 Wang R, Lin J, Chen S, et al. Research progress on electrolyte materials for power and energy storage batteries facing future development: from liquid to solid (in Chinese). Chin Sci Bull, 2025, 70: 1191–1217 [王若, 林久, 陈珊珊, 等. 面向未来发展的动力和储能电池电解质材料研发进展:从液态走向固态. 科学通报, 2025, 70: 1191–1217]
4 He B, Ye A, Chi S, et al. CAVD, towards better characterization of void space for ionic transport analysis. Sci Data, 2020, 7: 153
5 Yu Z G, Leng H Y, Wang L J, et al. Computational study on various properties of CaO-Al_2O_3-SiO_2 mold flux. Ceramics Int, 2019, 45: 7180–7187
6 Chen K, Pan K, He S, et al. Mimicking bidirectional inhibitory synapse using a porous-confined ionic memristor with electrolyte/tris(4-aminophenyl)amine neurotransmitter. Adv Sci, 2024, 11: 2400966
7 Zheng Z, Zhou J, Zhu Y. Computational approach inspired advancements of solid-state electrolytes for lithium secondary batteries: from first-principles to machine learning. Chem Soc Rev, 2024, 53: 3134–3166
8 Zhang Z, Nazar L F. Exploiting the paddle-wheel mechanism for the design of fast ion conductors. Nat Rev Mater, 2022, 7: 389–405
9 Zheng H, Li G, Liu J, et al. A rational design of garnet-type $Li_7La_3Zr_2O_{12}$ with ultrahigh moisture stability. Energy Storage Mater, 2022, 49: 278–290
10 Pang Y, Pan J, Yang J, et al. Electrolyte/electrode interfaces in all-solid-state lithium batteries: a review. Electrochem Energ Rev, 2021, 4: 169–193
11 Mi C, Hall S R. Improved air-stability and conductivity in the $75Li_2S{\cdot}25P_2S_5$ solid-state electrolyte system: the role of $Li_7P_3S_{11}$. RSC Adv, 2023, 13: 27066–27076
12 Lu X, Windmüller A, Schmidt D, et al. Li-ion conductivity of single-step synthesized glassy-ceramic $Li_{10}GeP_2S_{12}$ and post-heated highly crystalline $Li_{10}GeP_2S_{12}$. ACS Appl Mater Interfaces, 2023, 15: 34973–34982
13 Ito H, Shitara K, Wang Y, et al. Kinetically stabilized cation arrangement in Li_3YCl_6 superionic conductor during solid-state reaction. Adv Sci Weinh Baden-Wurtt Ger, 2021, 8: e2101413
14 van der Maas E, Famprikis T, Pieters S, et al. Re-investigating the structure–property relationship of the solid electrolytes $Li_{3-x}In_{1-x}Zr_xCl_6$ and the impact of In–Zr(IV) substitution. J Mater Chem A, 2023, 11: 4559–4571
15 Pang Y, Liu Y, Yang J, et al. Hydrides for solid-state batteries: a review. Mater Today Nano, 2022, 18: 100194
16 Li Z, Fu J, Zhou X, et al. Ionic conduction in polymer-based solid electrolytes. Adv Sci, 2023, 10: 2201718
17 Xiao W, Wang J, Fan L, et al. Recent advances in $Li_{1+x}Al_xTi_{2-x}(PO_4)_3$ solid-state electrolyte for safe lithium batteries. Energy Storage Mater, 2019, 19: 379–400
18 Wan H, Liu S, Deng T, et al. Bifunctional interphase-enabled $Li_{10}GeP_2S_{12}$ electrolytes for lithium–sulfur battery. ACS Energy Lett, 2021, 6: 862–868
19 Han J, Zhu J, Li Y, et al. Experimental visualization of lithium conduction pathways in garnet-type $Li_7La_3Zr_2O_{12}$. Chem Commun, 2012, 48: 9840–9842
20 Tan D H S, Wu E A, Nguyen H, et al. Elucidating reversible electrochemical redox of Li_6PS_5Cl solid electrolyte. ACS Energy Lett, 2019, 4: 2418–2427
21 Kim Y, Choi S. Investigating stacking variations in Li_3InCl_6 crystal structure and their influence on solid electrolyte properties. Acta Mater, 2024, 276: 120135
22 Wei Y, Yang Y, Chen Z, et al. *In-situ*-generated electron-blocking LiH enabling an unprecedented critical current density of over 15 mA cm^{-2} for solid-state hydride electrolytes. Adv Mater, 2023, 35: 2304285
23 Adams S. Origin of fast Li^+-ion conductivity in the compressible oxyhalide $LiNbOCl_4$. Energy Storage Mater, 2024, 68: 103359
24 Liu Y, Zhang D, Luo L, et al. Percolating coordinated ion transport cells in polymer electrolytes to realize room-temperature solid-state lithium metal batteries. Energy Storage Mater, 2024, 70: 103548
25 Wu Z, Xie Z, Yoshida A, et al. Nickel phosphate nanorod-enhanced polyethylene oxide-based composite polymer electrolytes for solid-state lithium batteries. J Colloid Interface Sci, 2020, 565: 110–118
26 Liu J, Wang P, Luan J, et al. VASE: a high-entropy alloy short-range order structural descriptor for machine learning. J Chem Theor Comput, 2024, 20: 11082–11092
27 Schleder G R, Padilha A C M, Acosta C M, et al. From DFT to machine learning: recent approaches to materials science—a review. J Phys Mater, 2019, 2: 32001
28 Wang D, Lin M, Zhang X, et al. Automatic modulation classification based on CNN-transformer graph neural network. Sensors, 2023, 23: 7281
29 Banjade H R, Hauri S, Zhang S, et al. Structure motif–centric learning framework for inorganic crystalline systems. Sci Adv, 2021, 7: eabf1754
30 Feng J, Zhou K, Li M, et al. Construction and application of materials database under data-driven research paradigm (in Chinese). Chin Sci Bull, 2025, 70: 4044–4065 [封俊杰, 周琨, 李木琛, 等. 数据驱动研究范式下材料数据库的构建与应用. 科学通报. 2025, 70: 4044–4065]
31 Yang S, Liu J, Jin F, et al. Integration of artificial intelligence and big data in materials science: new paradigms and scientific discoveries (in

Chinese). Chin Sci Bull, 2024, 69: 4730–4747 [杨帅, 刘建军, 金帆, 等. 人工智能与大数据在材料科学中的融合: 新范式与科学发现. 科学通报, 2024, 69: 4730–4747]
32 Besora M, Olmos A, Gava R, et al. A quantitative model for alkane nucleophilicity based on C−H bond structural/topological descriptors. Angew Chem Int Ed, 2020, 59: 3112–3116
33 Li S, Liu Y, Chen D, et al. Encoding the atomic structure for machine learning in materials science. WIREs Comput Mol Sci, 2022, 12: e1558
34 Wu M, Wei Z, Zhao Y, et al. Recent applications of theoretical calculations and artificial intelligence in solid-state electrolyte research: a review. Nanomaterials, 2025, 15: 225
35 Qiu Y, Zhang X, Tian Y, et al. Machine learning promotes the development of all-solid-state batteries. Chin J Struct Chem, 2023, 42: 100118
36 Wang K, Shi H, Li T, et al. Computational and data-driven modelling of solid polymer electrolytes. Digital Discov, 2023, 2: 1660–1682
37 Zheng Y, Yao Y, Ou J, et al. A review of composite solid-state electrolytes for lithium batteries: fundamentals, key materials and advanced structures. Chem Soc Rev, 2020, 49: 8790–8839
38 Lin Y Y, Yong A X B, Gustafson W J, et al. Toward design of cation transport in solid-state battery electrolytes: structure-dynamics relationships. Curr Opin Solid State Mater Sci, 2020, 24: 100875
39 Zhao Q, Zhang L, He B, et al. Identifying descriptors for Li^+ conduction in cubic Li-argyrodites via hierarchically encoding crystal structure and inferring causality. Energy Storage Mater, 2021, 40: 386–393
40 Chen X, Fu Z H, Gao Y C, et al. Application of machine learning in research on solid-state electrolytes for lithium batteries (in Chinese). J Chin Ceram Soc, 2023, 51: 488–498 [陈翔, 富忠恒, 高宇辰, 等. 机器学习在锂电池固态电解质研究中的应用. 硅酸盐学报, 2023, 51: 488–498]
41 Pereznieto S, Jaafreh R, Kim J, et al. Discovery of solid-state electrolytes for Na-ion batteries using machine learning. Mater Lett, 2023, 349: 134848
42 Sendek A D, Yang Q, Cubuk E D, et al. Holistic computational structure screening of more than 12000 candidates for solid lithium-ion conductor materials. Energy Environ Sci, 2017, 10: 306–320
43 Ma Y, Han S, Sun Y, et al. Improving ionic conductivity of garnet solid-state electrolytes using Gradient boosting regression optimized machine learning. J Power Sources, 2024, 604: 234492
44 Verduzco J C, Marinero E E, Strachan A. An active learning approach for the design of doped LLZO ceramic garnets for battery applications. Integr Mater Manuf Innov, 2021, 10: 299–310
45 Xu Y, Zong Y, Hippalgaonkar K. Machine learning-assisted cross-domain prediction of ionic conductivity in sodium and lithium-based superionic conductors using facile descriptors. J Phys Commun, 2020, 4: 55015
46 Cheng G, Gong X G, Yin W J. An approach for full space inverse materials design by combining universal machine learning potential, universal property model, and optimization algorithm. Sci Bull, 2024, 69: 3066–3074
47 He B, Chi S, Ye A, et al. High-throughput screening platform for solid electrolytes combining hierarchical ion-transport prediction algorithms. Sci Data, 2020, 7: 151
48 Zhao Q, Avdeev M, Chen L, et al. Machine learning prediction of activation energy in cubic Li-argyrodites with hierarchically encoding crystal structure-based (HECS) descriptors. Sci Bull, 2021, 66: 1401–1408
49 Xie T, France-Lanord A, Wang Y, et al. Graph dynamical networks for unsupervised learning of atomic scale dynamics in materials. Nat Commun, 2019, 10: 2667
50 Unke O T, Chmiela S, Sauceda H E, et al. Machine learning force fields. Chem Rev, 2021, 121: 10142–10186
51 Fu Z H, Chen X, Yao N, et al. The chemical origin of temperature-dependent lithium-ion concerted diffusion in sulfide solid electrolyte $Li_{10}GeP_2S_{12}$. J Energy Chem, 2022, 70: 59–66
52 Xu Z, Duan H, Dou Z, et al. Machine learning molecular dynamics simulation identifying weakly negative effect of polyanion rotation on Li-ion migration. npj Comput Mater, 2023, 9: 105
53 Xu Z, Lin Y, Xia Y, et al. Machine learning molecular dynamics simulations unraveling No paddle-wheel effect in $Li_2B_{12}H_{12}$ solid-state electrolyte at room temperature. J Power Sources, 2025, 637: 236591
54 Hajibabaei A, Kim K S. Universal machine learning interatomic potentials: surveying solid electrolytes. J Phys Chem Lett, 2021, 12: 8115–8120

补充材料

图S1 机器学习指导的固体电解质高通量筛选平台的结构

表S1 电解质材料应用相关的机器学习算法

本文以上补充材料见网络版csb.scichina.com. 补充材料为作者提供的原始数据, 作者对其学术质量和内容负责.

Summary for “机器学习辅助的固体电解质离子输运机制研究进展”

Ion transport mechanisms in solid electrolytes assisted by machine learning

Jingzhuo Xu, Xizhuo Chen, Yuepeng Pang* & Shiyou Zheng*

School of Materials and Chemistry, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China
* Corresponding authors, E-mail: pangyp@usst.edu.cn; syzheng@usst.edu.cn

Ionic conductivity stands as a defining performance criterion for solid electrolytes, intricately modulated by interdependent structural parameters spanning symmetry, porosity, chemical bonding, atomic configurations, defect distributions, and interfacial characteristics. Optimizing these interconnected variables presents formidable challenges in advancing novel solid electrolyte materials, chiefly manifested through exorbitant experimental trial-and-error costs expenditures and prohibitive computational complexity in theoretical modeling. Conventional experimental paradigms typically necessitate protracted synthesis and characterization cycles involving costly instrumentation, labor-intensive time-consuming sample preparation, stringent testing protocols, and systematic processing parameter refinement to isolate viable candidates exhibiting target electrochemical properties. Meanwhile, traditional theoretical frameworks exhibit profound inherent limitations when confronting the multi-scale, multidimensional complexity of ion transport phenomena. These models often fail to adequately bridge atomistic mechanisms with macroscopic observables, struggling to resolve the intricate, dynamic interactions between mobile ions and their host lattices. This deficiency becomes especially pronounced across diverse thermal regimes, compositional landscapes, and operational environments, thereby hindering predictive accuracy. The integration of machine learning methodologies heralds a transformative era for this domain. It enables the systematic mining of expansive, high-dimensional datasets to uncover profound structure-property relationships that were previously obscured to conventional, hypothesis-driven investigation and empirical analysis.These computational approaches establish critical bridge between atomic-scale structural motifs and macroscopic transport behavior, facilitating discovery of optimal design principles, accurate performance forecasting, rational material screening, and accelerated identification of high-performance solid electrolyte engineered for specialized energy storage applications.

This review synthesizes recent progress in machine learning applications for deciphering ion transport mechanisms within solid electrolytes, offering critical appraisal of cutting-edge methodologies, successful implementation paradigms, and emergent research frontiers. The review begins with a detailed introduction to representative solid electrolyte material systems, including oxide-based conductors such as NASICON and garnet structures, sulfide-based superionic conductors with exceptional room-temperature performance, emerging halide and hydride electrolytes with unique transport mechanisms, and polymer-based composite systems offering mechanical flexibility, emphasizing their distinct structural characteristics, ionic transport pathways, and established structure-property relationships. Particular emphasis is placed on comparative analysis of ion transport divergence across material classes, elucidating how structural heterogeneity, chemical diversity, synthesis routes, and processing conditions collectively govern ionic mobility, activation barriers, interfacial impedance, and bulk conductivity under operational duress. Subsequently, the review elucidates the paradigm of machine learning-enabled materials science research, encompassing a comprehensive discussion of key algorithmic approaches ranging from traditional regression methods and ensemble techniques to advanced neural networks, deep learning architectures, and graph-based models, the construction and utilization of comprehensive materials databases containing experimental and computational data, and the development of sophisticated structural descriptors that effectively capture the essential geometric, electronic, and chemical features governing ion transport phenomena. The final section synthesizes the practical applications of machine learning in solid electrolyte design through two primary methodological frameworks: experimental data-driven approaches that leverage empirical measurements, synthesis parameters, characterization results, and performance evaluations, and theoretical computation-driven strategies that integrate first-principles calculations, molecular dynamics simulations, and predictive machine learning models. This comprehensive assessment not only catalogs seminal advances and transformative case studies but also charts promising research vectors, addresses persistent constraints, and envisions technological breakthroughs emerging from deeper machine learning-solid electrolyte integration—ultimately propelling next-generation energy storage innovation through synergistic convergence of materials science, electrochemistry, and computational expertise.

solid electrolytes, machine learning, ionic conductivity, ion transport mechanisms

doi: 10.1360/CSB-2025-0249