Electronic Supplementary Material (ESI) for Physical Chemistry Chemical Physics.

Supporting Information

Development of a ReaxFF reactive force field for lithium ion conducting solid electrolyte $Li_{1+x}Al_xTi_{2-x}(PO_4)_3$ (LATP)

Yun Kyung Shin,[†] Mert Y. Sengul,[†,‖] A. S. M. Jonayat,[†] Wonho Lee,[‡] Enrique D. Gomez,[‡, ‖] Clive A. Randall[‖] and Adri C. T. van Duin*[,†]

[†] Department of Mechanical and Nuclear Engineering, Pennsylvania State University, University Park, Pennsylvania 16802, United States

[‡] Department of Chemical Engineering, Pennsylvania State University, University Park, Pennsylvania 16802, United States

[‖] Department of Materials Science and Engineering, Materials Research Institute, Pennsylvania State University, University Park, Pennsylvania 16802, United States

* Corresponding author: acv13@engr.psu.edu

ReaxFF reactive force field parameters for the solid electrolyte LATP materials

This force field can be used with the standalone ReaxFF program, as well as with the LAMMPS open-source MD-program and the ADF-program.

```
Reactive MD-force field: Li/Al/Ti/P/O/H/C ARPA-E June 20, 2017
 39       ! Number of general parameters
   50.0000 !Overcoordination parameter
    9.5469 !Overcoordination parameter
    1.4254 !Valency angle conjugation parameter
    1.7224 !Triple bond stabilisation parameter
    6.8702 !Triple bond stabilisation parameter
   60.4850 !C2-correction
    1.0588 !Undercoordination parameter
    4.6000 !Triple bond stabilisation parameter
   12.1176 !Undercoordination parameter
   13.3056 !Undercoordination parameter
  -40.0000 !Triple bond stabilization energy
    0.0000 !Lower Taper-radius
   10.0000 !Upper Taper-radius
    2.8793 !Not used
   33.8667 !Valency undercoordination
    6.0891 !Valency angle/lone pair parameter
    1.0563 !Valency angle
    2.0384 !Valency angle parameter
    6.1431 !Not used
```

```
   6.9290 !Double bond/angle parameter
   0.3989 !Double bond/angle parameter: overcoord
   3.9954 !Double bond/angle parameter: overcoord
  -2.4837 !Not used
   5.7796 !Torsion/BO parameter
  10.0000 !Torsion overcoordination
   1.9487 !Torsion overcoordination
  -1.2327 !Conjugation 0 (not used)
   2.1645 !Conjugation
   1.5591 !vdWaals shielding
   0.1000 !Cutoff for bond order (*100)
   2.0000 !Valency angle conjugation parameter
   0.6991 !Overcoordination parameter
  50.0000 !Overcoordination parameter
   1.8512 !Valency/lone pair parameter
   0.5000 !Not used
  20.0000 !Not used
   5.0000 !Molecular energy (not used)
   0.0000 !Molecular energy (not used)
   2.0000 !Valency angle conjugation parameter
 8   ! Nr of atoms; cov.r; valency;a.m;Rvdw;Evdw;gammaEEM;cov.r2;#
          alfa;gammavdW;valency;Eunder;Eover;chiEEM;etaEEM;n.u.
          cov r3;Elp;Heat inc.;n.u.;n.u.;n.u.;n.u.
          ov/un;val1;n.u.;val3,vval4
C    1.3817   4.0000  12.0000   1.8903   0.1838   0.9000   1.1341   4.0000
     9.7559   2.1346   4.0000  34.9350  79.5548   5.9666   7.0000   0.0000
     1.2114   0.0000 202.2908   8.9539  34.9289  13.5366   0.8563   0.0000
    -2.8983   2.5000   1.0564   4.0000   2.9663   0.0000   0.0000   0.0000
H    0.8930   1.0000   1.0080   1.3550   0.0930   0.8203  -0.1000   1.0000
     8.2230  33.2894   1.0000   0.0000 121.1250   3.7248   9.6093   1.0000
    -0.1000   0.0000  55.1878   3.0408   2.4197   0.0003   1.0698   0.0000
   -19.4571   4.2733   1.0338   1.0000   2.8793   0.0000   0.0000   0.0000
O    1.2450   2.0000  15.9990   2.3890   0.1000   1.0898   1.0548   6.0000
     9.7300  13.8449   4.0000  37.5000 116.0768   8.5000   8.3122   2.0000
     0.9049   0.4056  68.0152   3.5027   0.7640   0.0021   0.9745   0.0000
    -3.5500   2.9000   1.0493   4.0000   2.9225   0.0000   0.0000   0.0000
P    1.5994   3.0000  30.9738   2.3976   0.4904   0.4655   1.3000   5.0000
    10.7864   2.7884   5.0000   0.0000   0.0000   3.4186   5.3855   0.0000
    -1.0000   3.3786 125.6300   0.5475  11.9674  17.3824   0.0000   0.0000
   -13.7379   2.8674   1.0338   5.0000   2.8793   0.0000   0.0000   0.0000
Ti   2.0254   4.0000  47.8800   2.2105   0.1574   0.6311   0.1000   4.0000
    12.7041  16.6482   4.0000   0.1000   0.0000  -1.3647   6.8406   0.0000
    -1.0000   0.0000 143.1770  27.6505  -0.0753   0.0064   0.8563   0.0000
   -15.0000   3.8359   1.0338  12.0000   2.2632   0.0000   0.0000   0.0000
Li   0.0001   1.0000   6.9410   2.6000   0.0865   0.8380  -0.1000   1.0000
     9.6984   1.4649   1.0000   0.0000   0.0000  -4.0561   9.7698   0.0000
    -1.0000   0.0000  37.5000   5.4409   6.9107   0.1973   0.8563   0.0000
   -24.7916   2.2989   1.0338   1.0000   2.8103   1.3000   0.2000  13.0000
Al   2.1967   3.0000  26.9820   2.3738   0.2328   0.4961  -1.6836   3.0000
     9.4002   1.6831   3.0000   0.0076  16.5151  -0.3343   6.5000   0.0000
    -1.0000   0.0000  78.4675  20.0000   0.2500   0.0000   0.8563   0.0000
   -23.1826   1.5000   1.0338   8.0000   2.5791   1.4000   0.2000  13.0000
X   -0.1000   2.0000   1.0080   2.0000   0.0000   0.0100  -0.1000   6.0000
    10.0000   2.5000   4.0000   0.0000   0.0000   5.00009999.9999   0.0000
    -0.1000   0.0000  -2.3700   8.7410  13.3640   0.6690   0.9745   0.0000
   -11.0000   2.7466   1.0338   2.0000   2.8793   0.0000   0.0000   0.0000
27     ! Nr of bonds; Edis1;LPpen;n.u.;pbe1;pbo5;13corr;pbo6
                      pbe2;pbo3;pbo4;Etrip;pbo1;pbo2;ovcorr
 1  1 158.2004  99.1897  78.0000  -0.7738  -0.4550   1.0000  37.6117   0.4147
       0.4590  -0.1000   9.1628   1.0000  -0.0777   6.7268   1.0000   0.0000
 1  2 169.4760   0.0000   0.0000  -0.6083   0.0000   1.0000   6.0000   0.7652
       5.2290   1.0000   0.0000   1.0000  -0.0500   6.9136   0.0000   0.0000
 2  2 153.3934   0.0000   0.0000  -0.4600   0.0000   1.0000   6.0000   0.7300
```

```
        6.2500   1.0000   0.0000   1.0000  -0.0790   6.0552   0.0000   0.0000
 1  3 164.4303  82.6772  60.8077  -0.3739  -0.2351   1.0000  10.5036   1.0000
        0.4475  -0.2288   7.0250   1.0000  -0.1363   4.8734   0.0000   0.0000
 3  3 142.2858 145.0000  50.8293   0.2506  -0.1000   1.0000  29.7503   0.6051
        0.3451  -0.1055   9.0000   1.0000  -0.1225   5.5000   1.0000   0.0000
 2  3 160.0000   0.0000   0.0000  -0.5725   0.0000   1.0000   6.0000   0.5626
        1.1150   1.0000   0.0000   0.0000  -0.0920   4.2790   0.0000   0.0000
 1  4   0.0000   0.0000   0.0000   0.2171  -0.1418   1.0000  13.1260   0.6000
        0.3601  -0.2500  20.0000   1.0000  -0.2000  10.0000   1.0000   0.0000
 2  4   0.0000   0.0000   0.0000   0.2250  -0.1418   1.0000  13.1260   0.6000
        0.3912  -0.1310   0.0000   1.0000  -0.2000  10.0000   0.0000   0.0000
 3  4  81.2440 136.3567   0.0000   0.8652  -0.5000   1.0000  25.0000   0.2000
        3.5797  -0.2067  16.0316   1.0000  -0.2491   7.9507   1.0000   0.0000
 4  4   0.0000   0.0000   0.0000   0.2171  -0.5000   1.0000  35.0000   0.6000
        0.5000  -0.5000  20.0000   1.0000  -0.2000  10.0000   1.0000   0.0000
 1  5 122.2875   0.0000   0.0000   0.9631  -0.3000   0.0000  36.0000   0.5551
        0.3127  -0.2818  16.1571   1.0000  -0.1630   6.8622   0.0000   0.0000
 2  5   0.0000   0.0000   0.0000  -0.2872  -0.3000   1.0000  36.0000   0.0082
        1.7973  -0.2500  20.0000   1.0000  -0.2578   6.5219   1.0000   0.0000
 3  5 130.5629  37.6984   0.0000   0.9228  -0.3000   0.0000  36.0000   0.0850
        0.1150  -0.2818  16.1571   1.0000  -0.1343   6.8264   0.0000   0.0000
 4  5   0.0000   0.0000   0.0000  -0.2872  -0.3000   1.0000  36.0000   0.0082
        1.7973  -0.2500  20.0000   1.0000  -0.2578   6.5219   1.0000   0.0000
 5  5  80.1930   0.0000   0.0000  -0.8469  -0.2000   0.0000  16.0000   0.2022
        0.7528  -0.1924  14.9725   1.0000  -0.0885   5.0000   0.0000   0.0000
 1  6   0.0000   0.0000   0.0000   0.3228   0.3000   0.0000  26.0000   0.6003
        1.7161   0.0000  12.0000   1.0000  -0.1015   4.0000   0.0000   0.0000
 2  6   0.0000   0.0000   0.0000   1.0000  -0.3000   1.0000  36.0000   0.0100
        0.3415  -0.3500  25.0000   1.0000  -0.2770   6.4396   1.0000   0.0000
 3  6  65.2411  -0.0200   0.0000   0.1392   0.3000   0.0000   6.0000   0.1482
        0.0713  -0.2500  11.9965   1.0000  -0.0713   6.1903   0.0000   0.0000
 6  6   0.0000   0.0000   0.0000   0.3228   0.3000   0.0000  26.0000   0.6003
        1.7161   0.0000  12.0000   1.0000  -0.1015   4.0000   0.0000   0.0000
 5  6   0.0000   0.0000   0.0000  -0.8000  -0.2000   0.0000  16.0000   0.0100
        0.5000   0.0000  12.0000   1.0000  -0.1000   8.0000   0.0000   0.0000
 2  7  92.8579   0.0000   0.0000  -0.6528  -0.3000   0.0000  36.0000   0.1551
       10.0663  -0.3500  25.0000   1.0000  -0.0842   7.1758   0.0000   0.0000
 3  7 181.1998   0.0000   0.0000  -0.2276  -0.3000   0.0000  36.0000   0.1925
        0.2086  -0.3500  25.0000   1.0000  -0.2000   6.1462   0.0000   0.0000
 6  7   0.0000   0.0000   0.0000   1.0000   0.3000   0.0000  26.0000   1.0000
        0.5000   0.0000  12.0000   1.0000  -0.2000  10.0000   0.0000   0.0000
 7  7  34.0777   0.0000   0.0000   0.4832  -0.3000   0.0000  16.0000   0.5154
        6.4631  -0.4197  14.3085   1.0000  -0.1463   6.1608   0.0000   0.0000
 4  6   0.0000   0.0000   0.0000   1.0000   0.3000   0.0000  26.0000   1.0000
        0.5000   0.0000  12.0000   1.0000  -0.2000  10.0000   0.0000   0.0000
 4  7   0.0000   0.0000   0.0000   1.0000   0.3000   0.0000  26.0000   1.0000
        0.5000   0.0000  12.0000   1.0000  -0.2000  10.0000   0.0000   0.0000
 5  7   0.0000   0.0000   0.0000   0.2500  -0.5000   1.0000  36.0000   0.6000
        0.5000  -0.5000  20.0000   1.0000  -0.2000  10.0000   1.0000   0.0000
18    ! Nr of off-diagonal terms; Ediss;Ro;gamma;rsigma;rpi;rpi2
 1  2   0.1239   1.4004   9.8467   1.1210  -1.0000  -1.0000
 2  3   0.0283   1.2885  10.9190   0.9215  -1.0000  -1.0000
 1  3   0.1345   1.8422   9.7725   1.2835   1.1576   1.0637
 3  4   0.1472   1.7500  10.1210   1.6250   1.4379  -1.0000
 2  5   0.1750   1.7939  13.5000   1.1000  -1.0000  -1.0000
 3  5   0.1200   1.8000  10.5000   1.6526   1.4718  -1.0000
 1  5   0.2956   1.8399  10.6716   1.6878  -1.0000  -1.0000
 2  6   0.4912   1.6088   9.0157  -1.0000  -1.0000  -1.0000
 3  6   0.0500   1.8600   9.9536   1.4743  -1.0000   1.0000
 5  6   0.3620   2.7000   9.0056   0.0100  -1.0000  -1.0000
 2  7   0.0564   1.4937  12.0744   1.7276  -1.0000  -1.0000
 3  7   0.2017   1.8458  11.0700   1.6009  -1.0000  -1.0000
 6  7   0.3839   1.8924  13.0000   0.0100  -1.0000   1.0000
```

```
 4  5   0.3928   2.1116  11.2520   0.0100  -1.0000  -1.0000
 4  6   0.1939   2.0097  12.9613   0.0100  -1.0000  -1.0000
 4  7   0.2000   2.2000  11.3297   0.0100  -1.0000  -1.0000
 5  7   0.3918   2.8944   9.0000   0.0100  -1.0000  -1.0000
 2  4   0.1744   1.7715  10.4931   0.0100   0.0100  -1.0000
56    ! Nr of angles;at1;at2;at3;Thetao,o;ka;kb;pv1;pv2
 1  1  1  59.0573  30.7029   0.7606   0.0000   0.7180   6.2933   1.1244
 1  1  2  65.7758  14.5234   6.2481   0.0000   0.5665   0.0000   1.6255
 2  1  2  70.2607  25.2202   3.7312   0.0000   0.0050   0.0000   2.7500
 1  2  2   0.0000   0.0000   6.0000   0.0000   0.0000   0.0000   1.0400
 1  2  1   0.0000   3.4110   7.7350   0.0000   0.0000   0.0000   1.0400
 2  2  2   0.0000  27.9213   5.8635   0.0000   0.0000   0.0000   1.0400
 1  1  3  53.9517   7.8968   2.6122   0.0000   3.0000  58.6562   1.0338
 3  1  3  76.9627  44.2852   2.4177 -25.3063   1.6334 -50.0000   2.7392
 2  1  3  65.0000  16.3141   5.2730   0.0000   0.4448   0.0000   1.4077
 1  3  1  72.6199  42.5510   0.7205   0.0000   2.9294   0.0000   1.3096
 1  3  3  81.9029  32.2258   1.7397   0.0000   0.9888  68.1072   1.7777
 3  3  3  80.7324  30.4554   0.9953   0.0000   3.0000  50.0000   1.0783
 1  3  2  70.1101  13.1217   4.4734   0.0000   0.8433   0.0000   3.0000
 2  3  3  75.6935  50.0000   2.0000   0.0000   1.0000   0.0000   1.1680
 2  3  2  85.8000   9.8453   2.2720   0.0000   2.8635   0.0000   1.5800
 1  2  3   0.0000  25.0000   3.0000   0.0000   1.0000   0.0000   1.0400
 3  2  3   0.0000  15.0000   2.8900   0.0000   0.0000   0.0000   2.8774
 2  2  3   0.0000   8.5744   3.0000   0.0000   0.0000   0.0000   1.0421
 3  4  3  52.3622   9.6397   1.0379 -12.5000   0.0755   0.0000   3.0000
 2  3  4  99.9653  44.2516   0.1000   0.0000   3.0722   0.0000   1.0400
 3  3  4  60.0000  40.0000   4.0000   0.0000   1.0000   0.0000   1.0400
 3  2  4   0.0000  10.0000   1.0000   0.0000   1.0000   0.0000   1.0400
 2  4  3  75.0000  25.0000   2.0000   0.0000   1.0000   0.0000   1.2500
 4  3  4  71.2348  36.4753   3.7821  -1.9090   2.5489   0.0000   1.5801
 1  3  4  53.2386  27.6683   3.5448   0.0000   0.9129   0.0000   1.2759
 3  4  4  70.0000  25.0000   2.0000   0.0000   1.0000   0.0000   1.2500
 3  5  3  90.0000  30.4624   2.1468   0.0000   0.0500   0.0000   1.9485
 5  3  5  90.0000   5.7486   5.0000   0.0000   2.0000   0.0000   1.1000
 3  3  5  62.9344  15.0215   4.3743   0.0000   0.6168   0.0000   1.1673
 3  5  5  33.7127   8.0623   3.4580   0.0000   0.0500   0.0000   2.6065
 2  3  5  90.0000   9.7766   8.0000   0.0000   0.0505   0.0000   1.7257
 1  3  5  61.4655  39.8483   4.2082   0.0000   1.9793   0.0000   1.6005
 1  5  1  83.6785  13.3005   2.3764   0.0000   2.0000   0.0000   2.0851
 5  1  5  94.4356  19.9912   2.9221   0.0000   1.5337   0.0000   1.6359
 1  5  3  66.6190   9.5747   7.8475   0.0000   0.0500   0.0000   1.1000
 1  1  5  95.0666   9.4363   4.8061   0.0000   0.4005   0.0000   1.1784
 3  6  3 -27.6827   7.7797   2.8604   0.0000   1.3898   0.0000   2.4524
 2  3  6 100.0000   0.6912   5.0000   0.0000   0.1035   0.0000   2.0174
 6  3  6  91.1462   5.0541   5.7059   0.0000   1.6088   0.0000   1.4410
 5  3  6 100.0000   9.1014   3.0000   0.0000   1.3806   0.0000   1.1936
 3  2  7   0.0000   4.2750   1.0250   0.0000   1.3750   0.0000   1.4750
 2  2  7   0.0000   3.0000   1.0000   0.0000   1.0000   0.0000   1.2500
 7  2  7   0.0000  20.2391   0.1328   0.0000   2.9860   0.0000   1.0870
 2  3  7  88.1144  13.2143   1.5068   0.0000   3.0000   0.0000   1.0100
 3  3  7  34.4326  25.9544   5.1239   0.0000   2.7500   0.0000   1.7141
 7  3  7  20.7204  13.4875   4.0000   0.0000   0.6619   0.0000   1.4098
 2  7  2  67.4229   4.5148   5.9702   0.0000   3.0000   0.0000   2.6879
 2  7  3  41.8108  17.3800   2.6618   0.0000   0.7372   0.0000   1.0100
 3  7  3  59.5433  20.0000   4.0000   0.0000   3.0000   0.0000   2.0988
 2  7  7 180.0000 -26.7860   7.3549   0.0000   1.0000   0.0000   1.0252
 2  7  7  78.2279  37.6504   0.4809   0.0000   1.0000   0.0000   2.9475
 6  3  7  39.6976   7.5648   3.1234   0.0000   0.2151   0.0000   1.2915
 4  3  5  74.2241   6.7772   2.3445   0.0000   0.6613   0.0000   1.0000
 4  3  6  64.9363  10.0731   6.7665   0.0000   1.0000   0.0000   1.9956
 4  3  7  88.5948  10.6641   6.5332   0.0000   1.0000   0.0000   1.0000
 5  3  7  67.1070  10.0704   3.5000   0.0000   1.1378   0.0000   2.0094
40    ! Nr of torsions;at1;at2;at3;at4;;V1;V2;V3;V2(BO);vconj;n.u;n
```

```
1  1  1  1  -0.2500  34.7453   0.0288  -6.3507  -1.6000   0.0000   0.0000
1  1  1  2  -0.2500  29.2131   0.2945  -4.9581  -2.1802   0.0000   0.0000
2  1  1  2  -0.2500  31.2081   0.4539  -4.8923  -2.2677   0.0000   0.0000
1  1  1  3   1.2799  20.7787  -0.5249  -2.5000  -1.0000   0.0000   0.0000
2  1  1  3   1.9159  19.8113   0.7914  -4.6995  -1.0000   0.0000   0.0000
3  1  1  3  -1.4477  16.6853   0.6461  -4.9622  -1.0000   0.0000   0.0000
1  1  3  1   0.4816  19.6316  -0.0057  -2.5000  -1.0000   0.0000   0.0000
1  1  3  2   1.2044  80.0000  -0.3139  -6.1481  -1.0000   0.0000   0.0000
2  1  3  1  -2.5000  31.0191   0.6165  -2.7733  -2.9807   0.0000   0.0000
2  1  3  2  -2.4875  70.8145   0.7582  -4.2274  -3.0000   0.0000   0.0000
1  1  3  3  -0.3566  10.0000   0.0816  -2.6110  -1.9631   0.0000   0.0000
2  1  3  3  -1.4383  80.0000   1.0000  -3.6877  -2.8000   0.0000   0.0000
3  1  3  1  -1.1390  78.0747  -0.0964  -4.5172  -3.0000   0.0000   0.0000
3  1  3  2  -2.5000  70.3345  -1.0000  -5.5315  -3.0000   0.0000   0.0000
3  1  3  3  -2.0234  80.0000   0.1684  -3.1568  -2.6174   0.0000   0.0000
1  3  3  1   1.1637 -17.3637   0.5459  -3.6005  -2.6938   0.0000   0.0000
1  3  3  2  -2.1289  12.8382   1.0000  -5.6657  -2.9759   0.0000   0.0000
2  3  3  2   2.5000 -22.9397   0.6991  -3.3961  -1.0000   0.0000   0.0000
1  3  3  3   2.5000 -25.0000   1.0000  -2.5000  -1.0000   0.0000   0.0000
2  3  3  3  -2.5000  -2.5103  -1.0000  -2.5000  -1.0000   0.0000   0.0000
3  3  3  3  -2.5000 -25.0000   1.0000  -2.5000  -1.0000   0.0000   0.0000
0  1  2  0   0.0000   0.0000   0.0000   0.0000   0.0000   0.0000   0.0000
0  2  2  0   0.0000   0.0000   0.0000   0.0000   0.0000   0.0000   0.0000
0  2  3  0   0.0000   0.1000   0.0200  -2.5415   0.0000   0.0000   0.0000
0  1  1  0   0.0000  50.0000   0.3000  -4.0000  -2.0000   0.0000   0.0000
1  1  3  3  -0.0002  20.1851   0.1601  -9.0000  -2.0000   0.0000   0.0000
1  3  3  1   0.0002  80.0000  -1.5000  -4.4848  -2.0000   0.0000   0.0000
3  1  3  3  -0.1583  20.0000   1.5000  -9.0000  -2.0000   0.0000   0.0000
1  1  1  4  -0.3232  14.3871   0.1823  -9.8682  -1.7255   0.0000   0.0000
4  1  1  4  -0.1452  50.0000  -0.1915  -8.0773  -1.7255   0.0000   0.0000
0  1  4  0   4.0000  45.8264   0.9000  -4.0000   0.0000   0.0000   0.0000
0  4  4  0   4.0000  45.8264   0.9000  -4.0000   0.0000   0.0000   0.0000
4  3  4  3   0.1946  20.0266  -0.3314  -8.1095   0.0000   0.0000   0.0000
2  1  3  4  -0.1220  61.5112   0.3316  -5.4970   0.0000   0.0000   0.0000
2  3  4  3  -1.5000  -1.0000   0.3045  -2.5000   0.0000   0.0000   0.0000
1  3  4  3  -0.9451   8.2456   0.5757  -5.7138   0.0000   0.0000   0.0000
2  1  3  5   0.0000  84.3556   0.1000  -3.1953   0.0000   0.0000   0.0000
1  1  3  5   0.0000  51.0461   0.1059  -7.2043   0.0000   0.0000   0.0000
2  3  5  3  -0.2500   0.0100  -0.5000  -4.6984   0.0000   0.0000   0.0000
2  3  6  3   0.0918  64.5743  -1.0000  -4.4228   0.0000   0.0000   0.0000
1    ! Nr of hydrogen bonds;at1;at2;at3;Rhb;Dehb;vhb1
3  2  3   2.1200  -3.5800   1.4500  19.5000
```