arXiv:2602.07225v1 [math.NA] 6 Feb 2026

伪四维 DFN 锂离子电池模型的可扩展预条件器*

THOMAS ROY†、NICHOLAS W. BRADY†、Giovanna Bucci†、Nicholas R. Cross†、Victoria M. Ehlinger†、Tiras Y. Lin†、Hanyu Li†、和 Marcus A. Worsley†

摘要。 伪四维 Doyle–Fuller–Newman（DFN）模型能够对采用三维电极结构且具有颗粒尺度扩散特性的锂离子电池进行预测性模拟，并将标准伪二维（P2D）表述扩展为对电池几何结构的完整解析。这会产生大型非线性系统，其跨多个物理尺度的耦合十分紧密，为可扩展数值求解带来了重大挑战。我们提出了块结构预处理策略，以利用耦合系统的数学性质，并采用多重网格技术处理电极级算子，采用局部求解器处理颗粒尺度扩散。我们针对多种几何结构开展了全面的可扩展性研究，包括均质与非均质立方电池、扁平化卷绕结构以及三周期极小曲面电极，以评估求解器稳健性和并行可扩展性。所提出的方法始终能够实现高效收敛，并支持在大型并行硬件上求解具有数亿自由度的电池模型。

关键词。 块预条件，电池仿真，有限元方法，Doyle–Fuller–Newman 模型，多尺度建模，高性能计算

MSC 分类代码。 65N30, 65F08, 65Y05, 65M60

1. 引言。 锂离子电池应用广泛，涵盖消费电子产品、电动汽车和电网级储能系统。基于物理的预测性模拟对于此类设备的设计、安全性和优化至关重要 [12]。在用于完整电池单体的连续介质尺度模型中，Doyle–Fuller–Newman（DFN）模型是广受认可的标准 [22, 25]。

经典 DFN 模型通常称为伪二维（P2D）表述，因为它将一维贯穿电池传输与球形活性材料颗粒中的径向扩散耦合起来，从而以可控的计算成本捕捉关键的多尺度物理。这些假设适用于层状、均质的板状电极；对于这类电极，空间变化主要沿电池厚度方向发生，且其几何结构能够通过一维模型有效描述。然而，许多现代电池结构越来越不符合这一维几何假设 [33, 42, 17]。

商业电池通常制成棱柱形或圆柱形电池，由薄电极堆叠并卷绕而成。作为一阶近似，这类电池通常采用 P2D 模型，并忽略电极长度方向上的变化。然而，极耳位置和集流体几何结构可能导致电化学响应出现显著的三维变化[52, 57]。此外，某些形式的微观结构非均质性也可以纳入连续介质尺度模拟 [43, 47]。这些传统的板状电极几何结构源自传统制造技术，而先进制造方法则能够实现新的电极结构和更厚的电极[52, 57]

*上传于2026年2月6日。**资助：** 本研究由劳伦斯利弗莫尔国家实验室在美国能源部的主持下，依据合同 DE-AC52-07NA27344 完成。本研究获得劳伦斯利弗莫尔国家实验室 LDRD 23-SI-002 项目的支持。LLNL发布编号：LLNL-JRNL-2015625-DRAFT。

†美利坚合众国加利福尼亚州利弗莫尔，劳伦斯利弗莫尔国家实验室。通讯作者：Thomas Roy（roy27@llnl.gov）。

结构 [64, 9, 67, 65, 61, 58]。这类结构化电极自然会在传输和反应过程中引入复杂的三维空间变化。此外，热传输以及由膨胀引起的机械应力等物理机制，会贯穿整个三维电池几何结构及电子绝缘层 [40, 34, 39, 14]。同样，由电极变形引起的电解液运动正日益受到研究，它可能显著影响商业电池的性能和衰减 [2, 10]。

近期若干研究将经典 DFN 方程扩展至完整的三维几何结构，同时保留颗粒尺度径向扩散，由此得到伪四维（P4D）公式，可解析几何异质性和多物理场效应，而这些效应无法通过一维贯穿电池模型加以刻画。在电池尺度上，针对层状几何结构的 P4D 电化学-热耦合公式已在包括 COMSOL Multiphysics® 在内的商用多物理场软件中实现 [20,38, 42, 15]。为降低解析重复层状结构的计算成本，研究人员在 Abaqus® 中引入了降阶 P4D 框架，同时保留三维解析能力 [28, 19]。在电极架构尺度上，研究人员使用 COMSOL 和开源代码 Firedrake [27, 17, 29]，采用 P4D 公式研究显式解析的三维多孔及增材制造几何结构，包括晶格、翅片和基于 TPMS 的结构。除电化学-热耦合外，研究人员还在 Abaqus® 中提出了强耦合 P4D 框架，将力学、热传递和多孔电解液流动纳入其中，以处理完整的三维电池几何结构 [35]。P4D 公式还与工况测量相结合，用于解析结构化电极中的深度相关锂化异质性 [60]。与这类以应用为主的研究不同，Xu 和 Cao 分析了 P4D DFN 方程的数值结构，并建立了空间维度大于一时的最优有限元收敛速率 [63]。现有 P4D 研究几乎都依赖直接求解器，这从根本上限制了问题规模，也使物理保真度受限于规模较小、网格单元数少于 10^5 的演示。据我们所知，唯一采用可扩展求解器的工作是 [17], , 该工作由本文作者此前完成。

P4D模型会产生紧密耦合的非线性系统，其规模可能极其庞大。电解液浓度、离子电势、电子电势和固相浓度通过电极内部的非线性电荷转移反应而强烈耦合。这种强耦合加上特征时间尺度跨度很大，使分离求解策略的有效性受到限制；这类策略通常需要小到难以接受的时间步长，因此更倾向于采用全耦合隐式方法。早在伪二维模型的研究中，人们就已认识到这一局限。当时，一种称为 BAND(J) 的直接求解器利用了所得线性系统的带状结构 [45, 46]。然而，对于伪四维模型，直接求解器无法随电极级系统的规模扩展；该系统源于三维微分算子的离散化。因此，要实现这类系统的可扩展求解，就需要采用配备有效预条件策略的迭代方法 [59]。

求解由全隐式时间离散产生的耦合非线性系统的一种自然方法，是将牛顿法与用于线性化系统的 Krylov 子空间方法相结合。该方法的效率关键取决于是否具备稳健且可扩展的预条件子。对不完全分解或整体式多重网格方法的简单应用通常会失败，或表现出较差的可扩展性。幸运的是，DFN 系统呈现出丰富的块结构，可在设计有效预条件子时加以利用。若干预处理策略

已针对忽略颗粒尺度扩散的电池模拟提出，通常是在显式解析电极微观结构的背景下 [62, 3, 24]。

本文提出了适用于三维电池几何结构中伪四维 DFN 模型全隐式求解的可扩展预条件器，并展示了随着三维电极网格细化而实现的强扩展性和弱扩展性。我们研究了利用耦合系统内在结构及其组成块数学性质的块预条件器。电极层级块对应椭圆型或抛物型算子，因此非常适合采用多重网格方法 [11]。相比之下，颗粒层级块由许多规模较小的局部系统组成，可通过局部求解策略高效处理。本文考察了块对角和块三角两种预处理方法，从而能够在计算成本与变量间耦合的保真度之间进行权衡。这些预处理策略使得求解包含超过 10^7 个网格单元的大规模全耦合三维电池仿真成为可能。

第 2 节介绍适用于三维电池几何结构的伪四维 DFN 模型。第 3 节介绍空间和时间离散化：电极层级方程采用有限元法，颗粒尺度扩散方程则采用球坐标下的有限差分法，并使用全耦合隐式时间步进。第 4 节分析由此得到的块系统，并介绍所提出的预处理策略。最后，第 5 节给出四个测试案例，并针对大规模问题开展可扩展性研究。

2. 控制方程。我们考虑用于锂离子电池的 Doyle–Fuller–Newman（DFN）模型 [22, 25], ，并将其推广至具有任意形状三维几何结构的电池单元。区域 $\Omega \subset \mathbb{R}^3$ 被划分为负电极（阳极）Ω_n、隔膜（膜）Ω_m和正电极（正极）Ω_p，使得 $\Omega = \Omega_n \cup \Omega_m \cup \Omega_p$，且这些子域彼此不相交。按照惯例，电池中电极的正负极性根据放电时（即电池输出功率时）的极性定义。每个点 $\mathbf{x} \in \Omega_n \cup \Omega_p$ 都对应一个半径为 $R_s(\mathbf{x})$ 的代表性球形活性材料颗粒。这里假设 Ω_p 中为 $R_s = R_p$，而 Ω_n 中为 $R_s = R_n$；其中 R_p 和 R_n 均为与各自电极中的活性材料相关的常数值。这对应于一种均质化描述，其中颗粒尺寸分布用代表性的平均值近似表示。电极尺度区域与颗粒尺度区域通过电极内部及颗粒表面发生的电荷转移反应相耦合，具体如下文所述，从而得到图 1 所示的伪 4D 模型。第 5 节所研究测试案例中，下述方程的参数数值见附录 C。

2.1. 活性颗粒中的锂扩散。 颗粒中的固相锂浓度 $c_s = c_s(r, \mathbf{x}, t)$ 满足

$$\frac{\partial c_s}{\partial t} = \frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(D_s r^2 \frac{\partial c_s}{\partial r}\right), \quad r \in [0, R_s(\mathbf{x})], \tag{2.1}$$

其中 D_s 为固相扩散系数。在颗粒中心，对称性要求

$$\left.\frac{\partial c_s}{\partial r}\right|_{r=0} = 0. \tag{2.2}$$

在表面，径向通量与反应电流密度 i_n成正比，

$$-D_s \left.\frac{\partial c_s}{\partial r}\right|_{r=R_s} = \frac{i_n}{F}, \tag{2.3}$$

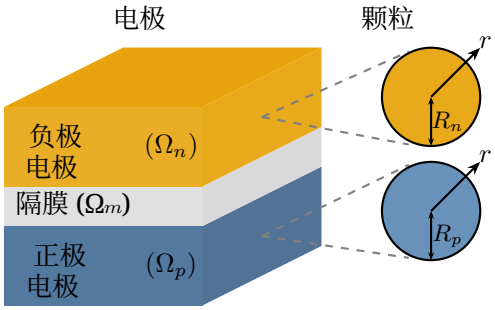


图 1：伪四维 DFN 电池模型示意图，其中包含三维电极和一维球形颗粒。

其中 F 为法拉第常数。

2.2. 电解质传输。电解质相锂浓度 $c_e = c_e(\mathbf{x}\ t)$ 满足守恒方程

$$\varepsilon \frac{\partial c_e}{\partial t} - \nabla \cdot \left(D_e^{\text{eff}} \nabla c_e \right) = \frac{1 - t_+^0}{F} a i_n, \quad \text{in } \Omega, \tag{2.4}$$

其中， $\varepsilon(\mathbf{x})$ 为局部孔隙率， t_+^0 为迁移数， $a(\mathbf{x})$ 为单位体积的电化学活性表面积。迁移数通常可能取决于电解液浓度 c_e [22]；此处将其视为常数，与附录 C 中指定的材料参数一致。有效扩散率由 Bruggeman 关联式给出 [13]

$$D_e^{\text{eff}}(\mathbf{x}, c_e) = \varepsilon(\mathbf{x})^b D_e(c_e), \tag{2.5}$$

其中， $D_e(c_e)$ 为体相电解质扩散率， $b = 1.5$ 为 Bruggeman 指数 .

2.3. 电荷守恒。电解质相（离子）电势，$\phi_e = \phi_e(\mathbf{x}\ t)$，满足

$$-\nabla \cdot \left(\kappa^{\text{eff}} \nabla \phi_e + \kappa^{\text{eff}} \frac{2RT(1 - t_+^0)}{F c_e} \nabla c_e \right) = a i_n, \quad \text{in } \Omega. \tag{2.6}$$

有效电解液电导率定义为

$$\kappa^{\text{eff}}(\mathbf{x}, c_e) = \varepsilon(\mathbf{x})^b \kappa(c_e), \tag{2.7}$$

其中， $\kappa(c_e)$为体相电解质电导率。

固相（电子）电势 $\phi_s = \phi_s(\mathbf{x}\ t)$定义于电极区域内，并满足

$$-\nabla \cdot \left(\sigma^{\text{eff}} \nabla \phi_s \right) = -a i_n, \quad \text{in } \Omega_n \cup \Omega_p. \tag{2.8}$$

有效固相电导率考虑了活性材料相体积 me
分数 $\varepsilon_s(\mathbf{x})$，其表达式为

$$\sigma^{\text{eff}}(\mathbf{x}) = \varepsilon_s(\mathbf{x})^b \sigma, \tag{2.9}$$

其中， σ 是活性材料的本体电导率。

2.4. 界面动力学。界面反应电流密度 i_n 遵循指数形式的 Butler–Volmer 关系：

$$i_n = i_0 \left[\exp\left(\frac{\alpha_a F}{RT} \eta \right) - \exp\left(-\frac{\alpha_c F}{RT} \eta \right) \right], \tag{2.10}$$

其中， $\eta = \phi_s - \phi_e - U_{\mathrm{ocp}}(c_s^{\mathrm{surf}})$ 为过电位， R 为通用气体常数， T 为温度。这里， α_a 和 α_c 分别为阳极和阴极电荷转移系数（$\alpha_a + \alpha_c = 1$），而 $c_s^{\mathrm{surf}} = c_s(R_s(\mathbf{x}), \mathbf{x}\ t)$ 为活性颗粒的表面浓度。交换电流密度 i_0 取决于电解质和固相浓度，通常建模为

$$i_0 = k\, c_e^{\alpha_a} \left(c_{s,\max} - c_s^{\mathrm{surf}} \right)^{\alpha_a} \left(c_s^{\mathrm{surf}} \right)^{\alpha_c}, \tag{2.11}$$

其中， k 为速率常数，$c_{s,\max}$ 为固相中的最大锂浓度。

2.5. 边界条件和初始条件。根据物理配置，在$\partial\Omega$ 上施加边界条件，以模拟集流体、绝缘和对称性。本文将考虑施加电流边界条件（而非施加电压）。因此，在正极集流体处，对 ϕ_s 施加诺伊曼条件，以强制施加电流密度满足

$$\sigma^{\mathrm{eff}} \nabla \phi_s \cdot \mathbf{n} = \frac{I_{\mathrm{app}}}{A}, \quad \text{on } \Gamma_p \tag{2.12}$$

其中 I_{app} 为施加电流， A 为正极集流体 Γ_p 的面积。在负极集流体 Γ_n 处，固相电势通过狄利克雷边界条件接地：

$$\phi_s = 0, \quad \text{on } \Gamma_n. \tag{2.13}$$

在电极（Ω_n、Ω_p）与隔膜（Ω_m）的界面处，对 ϕ_s 施加零通量（诺伊曼）边界条件。电解液相（ϕ_e、 c_e）在绝缘边界（Ω 的外边界）上满足零通量条件。必须为 $c_e(\mathbf{x}, 0)$、 $\phi_e(\mathbf{x}, 0)$、 $\phi_s(\mathbf{x}, 0)$ 和 $c_s(r, \mathbf{x}, 0)$ 提供初始条件。

3. 离散化。 本节介绍我们的离散化格式，包括颗粒方程的有限差分格式以及电极层级方程的有限元离散化。我们还说明在有限元框架中实现该耦合格式的相关细节。

3.1. 颗粒方程的空间离散。 我们采用有限差分法，在一维非均匀球形网格上对球形活性材料颗粒中固相浓度 $c_s(r)$ 的径向扩散方程 (2.1) 进行离散。该格式结合了 [56] 中的球坐标格式与 [55] 中的非均匀网格格式。

设$\{r_i\}_{i=1}^{N_c}$ 表示严格递增的径向节点位置序列，使得$r_1 = 0$ 且 $r_{N_c} = R_s$，从而定义计算网格。我们定义 $\Delta r_{i-1} = r_i - r_{i-1}$、$\Delta r_i = r_{i+1} - r_i$以及局部网格比 $\theta_i = \Delta r_i / \Delta r_{i-1}$。

式（2.1）中的微分算子写成两项之和：

$$\frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{dc_s}{dr} \right) = \frac{2}{r} \frac{dc_s}{dr} + \frac{d^2 c_s}{dr^2}, \tag{3.1}$$

并分别对每一项进行近似。

对于内部节点 $2 \leq i \leq N_c - 1$，我们将一阶导数项和二阶导数项离散化为

$$\mathcal{L}_1(c)_i = \frac{2D_s}{r_i} \frac{c_{i+1} - \theta_i^2 c_{i-1} - (1-\theta_i^2)c_i}{\Delta r_i (1+\theta_i)}, \tag{3.2}$$

$$\mathcal{L}_2(c)_i = D_s \frac{2}{\Delta r_i \Delta r_{i-1}(1+\theta_i)} \left(c_{i+1} + \theta_i c_{i-1} - (1+\theta_i)c_i\right). \tag{3.3}$$

节点 i 处的完整离散拉普拉斯算子为

$$\mathcal{L}_h(c)_i = \mathcal{L}_1(c)_i + \mathcal{L}_2(c)_i. \tag{3.4}$$

颗粒中心处的零通量边界条件 (2.2) 使用二阶单边近似进行离散：

$$\mathcal{L}_h(c)_1 = \frac{6D_s}{\Delta r_1^2} \left(c_2 - c_1\right). \tag{3.5}$$

在颗粒表面，通量边界条件 (2.3) 使用二阶后向差分施加：

$$\mathcal{L}_h(c)_{N_c} = \frac{2D_s}{\Delta r_{N_c-1}^2} \left(c_{N_c-1} - c_{N_c}\right) + \frac{2i_n}{F\Delta r_{N_c-1}} \left(1 + \frac{\Delta r_{N_c-1}}{R_s}\right). \tag{3.6}$$

因此，空间离散后的颗粒系统为

$$\frac{\partial c_{s,i}}{\partial t} = \mathcal{L}_h(c_s)_i, \quad \text{for } i = 1, \ldots, N_c, \tag{3.7}$$

其中 $c_{s,\ i} \approx c_s(r_i)$。

注释 3.1. 根据 [55], , 上述空间离散在网格局部规则的条件下具有二阶空间精度。具体而言，如果相邻单元满足 $\Delta r_i - \Delta r_{i-1} = \mathcal{O}(\Delta r_{i-1}^2)$ 或 $\mathcal{O}(\Delta r_i^2)$，那么所有节点处的局部截断误差均为 $\mathcal{O}(\Delta r_{i-1}^2)$。如果不满足这一条件（例如在分级网格过于密集时），该格式仍然保持相容性，但空间精度仅为一阶。

本研究采用通过等比数列定义的规则网格。¯ ¯设首个和末个单元之间的比值为 $\theta = \Delta r_1 / \Delta r_{N_c-1}$，其中 $0 < \theta < 1$。单元按照以下关系逐渐变小

$$\Delta r_i = \bar{\theta}^{\frac{1}{N_c-2}} \Delta r_{i-1}. \tag{3.8}$$

这种指数平滑网格比注释 3.1 中要求的规则性更强。

3.2. 电极层级方程的空间离散。电解液浓度 c_e、电解液电势 ϕ_e和固相电势 ϕ_s 的三维方程，采用连续分片线性有限元，在区域 Ω 上的协调四面体或六面体网格上进行离散。令 $V_h \subset H^1(\Omega)$ 表示连续分片线性函数的标准有限元空间，并且

$V_h^0 = \{v \in V_h \mid v = 0 \text{ 在 } \Gamma_n\}$ 上，即强制施加接地边界条件 (2.13)。

控制方程通过反应电流密度 i_n 耦合，该电流密度取决于电极中每个点处颗粒级扩散方程的解。我们采用整体式方法，将包括颗粒浓度在内的所有变量作为单个非线性系统的一部分同时求解。下面给出电极层级方程的变分形式。

我们求解 $c_e, \phi_e \in V_h$ 和 $\phi_s \in V_h^0$，使得对所有测试函数 $v_{c_e}, v_{\phi_e} \in V_h$ 和 $v_{\phi_s} \in V_h^0$，以下变分方程分别成立：

$$\int_\Omega \varepsilon \frac{\partial c_e}{\partial t} v_{c_e} \,\mathrm{d}\mathbf{x} + \int_\Omega D_e^{\text{eff}} \nabla c_e \cdot \nabla v_{c_e} \,\mathrm{d}\mathbf{x} = \int_\Omega \frac{1 - t_+^0}{F} a i_n \, v_{c_e} \,\mathrm{d}\mathbf{x}, \tag{3.9}$$

$$\int_\Omega \kappa^{\text{eff}} \nabla \phi_e \cdot \nabla v_{\phi_e} \,\mathrm{d}\mathbf{x} + \int_\Omega \kappa^{\text{eff}} \frac{2RT(1 - t_+^0)}{F c_e} \nabla c_e \cdot \nabla v_{\phi_e} \,\mathrm{d}\mathbf{x} = \int_\Omega a i_n \, v_{\phi_e} \,\mathrm{d}\mathbf{x}, \tag{3.10}$$

$$\int_{\Omega_n \cup \Omega_p} \sigma^{\text{eff}} \nabla \phi_s \cdot \nabla v_{\phi_s} \,\mathrm{d}\mathbf{x} = -\int_{\Omega_n \cup \Omega_p} a i_n \, v_{\phi_s} \,\mathrm{d}\mathbf{x} + \int_{\Gamma_p} \frac{I_{\text{app}}}{A} \, v_{\phi_s} \,\mathrm{d}\mathbf{s}, \tag{3.11}$$

同时求解 c_s 并满足 (3.7)。

3.3. 时间离散。对于时间步进，我们采用后向欧拉法，该方法是全隐式的，且具有一阶精度。

液相浓度和固相浓度的累积项近似为

$$\frac{\partial c_s}{\partial t} \approx \frac{c_s^{i+1} - c_s^i}{t_{i+1} - t_i}, \tag{3.12}$$

$$\frac{\partial c_e}{\partial t} \approx \frac{c_e^{i+1} - c_e^i}{t_{i+1} - t_i}, \tag{3.13}$$

其中，c_s^i、c_e^i 是时间 t_i处的近似解。空间离散方程中的其余项均在时间 t_{i+1} 处求值，因此该格式是隐式的。

虽然上述空间离散相对简单，但在大多数情况下可能已经足够。相比之下，对于时间离散，分别采用高阶自适应时间步进格式，可以显著提高数值精度和计算效率。例如，Sundials [31, 26] 中的自适应高阶格式已用于 PyBaMM[54], ，从而实现了非常快速且稳定的伪二维模拟。由于我们关注的是用于伪四维模拟的可扩展求解器，为了简便起见，仅考虑后向欧拉法。

3.4. 实现细节。 离散方程使用 Firedrake [29], 实现。Firedrake 是一个开源有限元框架，支持以高抽象层次指定变分形式。Firedrake 原生集成 PETSc [7, 5, 6], ，可使用可扩展的非线性与线性求解器，包括第 4 节讨论的求解器策略。选择该框架的另一项原因是

它支持通过 pyadjoint [44], 自动计算伴随，而这正是偏微分方程约束设计优化所必需的。此前，Firedrake 已用于拓扑优化，为电化学器件设计多孔电极 [48, 37, 8]。本研究开发的代码也用于正在进行的电池电极拓扑优化研究。

开展这项工作时，Firedrake 尚不能稳健地支持限制在子域上的有限元空间。因此，所有变量都定义在整个计算域上。具体而言，固相电势和固相浓度均在整个区域内定义，尽管它们在物理上仅与电极区域相关。这种设计选择对于拓扑优化是必要的，因为电极位置会在优化过程中发生变化 [48, 37]。相比之下，许多电池模型实现会将这些变量限制在固定的正极和负极子域内。

为避免隔膜或仅含电解液区域（Ω_m）出现矩阵奇异性，在这些区域中将有效固相电导率 σ^{eff} 设为较小的正则化值 1×10^{-22}S/m，而电极的物理电导率约为 > 1 S/m。这也有效地模拟了 Ω_m 与电极区域（Ω_n、Ω_p）界面处的无通量边界条件。同样，颗粒扩散方程的定义方式使其在电极外的区域满足 $\partial c_s/\partial t = 0$ 。经验证，这些正则化选择对电极区域内的解没有可测量的影响。Firedrake 的近期发展已支持在子域上定义有限元空间 [51], ；若不进行拓扑优化，未来的实现或可利用这一功能。

固相浓度扩散方程通过对颗粒自由度采用变分形式纳入有限元框架；详情见附录A。由于标准连续有限元空间会在电极区域内强制引入人为连续性，因此固相浓度采用分片常数有限元空间。具体而言，对于离散颗粒半径 $r = r_i$ 对应的每个固相浓度分量，均在电极尺度网格上表示为单元分片常数场。尽管这种选择会在非结构四面体网格上产生大量颗粒级未知量，但它形成了自然的块结构，非常适合第4节所述的求解器策略。

4. 求解策略。 在涉及三维偏微分方程的大规模模拟中，由此产生的线性系统可能因内存需求和计算成本过高而无法通过直接求解器高效求解，尤其是在空间分辨率较高时。由于P4D模型的复杂性，直接求解器很快便会达到能力上限。迭代求解器提供了一种可扩展的替代方案，能够以更有利的内存占用求解大型稀疏线性系统，也更适用于并行计算环境。本节概述P4D模型离散化所产生线性系统的结构，并详细介绍为实现可扩展模拟而采用的预处理策略。

4.1. 线性系统结构。离散化后，我们使用牛顿法对非线性系统 (3.7) 和 (3.9)–(3.11) 进行线性化。非线性残差可

写成块残差方程

$$\mathcal{R} = \begin{bmatrix} R_{\phi_s} \\ R_{\phi_e} \\ R_{c_e} \\ R_{c_s} \end{bmatrix} = 0, \tag{4.1}$$

其中， R_{ϕ_s} 是式 (3.11) 的残差， R_{ϕ_e} 是式 (3.10) 的残差， R_{c_e} 是式 (3.9) 的残差， R_{c_s} 是式 (3.7) 的残差。

该系统线性化后得到如下形式的块矩阵：

$$\begin{bmatrix} A_{\phi_s,\phi_s} & A_{\phi_s,\phi_e} & A_{\phi_s,c_e} & A_{\phi_s,c_s} \\ A_{\phi_e,\phi_s} & A_{\phi_e,\phi_e} & A_{\phi_e,c_e} & A_{\phi_e,c_s} \\ A_{c_e,\phi_s} & A_{c_e,\phi_e} & A_{c_e,c_e} & A_{c_e,c_s} \\ A_{c_s,\phi_s} & A_{c_s,\phi_e} & A_{c_s,c_e} & A_{c_s,c_s} \end{bmatrix}, \tag{4.2}$$

其中，每个块 A_{ij} 表示残差方程 R_i 关于变量 $j \in [\phi_s, \phi_e, c_e, c_s]$的线性化。与 c_s 相关的块按照电极维度逐点排序。例如，对于对角块

$$A_{c_s,c_s} = \begin{bmatrix} (A_{c_s,c_s})_{1,1} & \cdots & (A_{c_s,c_s})_{n,n} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ (A_{c_s,c_s})_{n,1} & \cdots & (A_{c_s,c_s})_{n,n} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} (A_{c_s,c_s})_{1,1} & & \\ & \ddots & \\ & & (A_{c_s,c_s})_{n,n} \end{bmatrix}, \tag{4.3}$$

其中，$(.)_{i,j}$ 表示元素 i 关于元素 j的线性化。由于颗粒方程中电极级单元之间不存在相互依赖，因此这是一个块对角矩阵。每个子块 $(A_{c_s,c_s})_{i,i}$ 是元素 i处一维有限差分颗粒系统对应的 $N_c \times N_c$ 三对角矩阵。

图 2 展示了式 (4.2) 中完整块矩阵的稀疏结构，该矩阵对应一个伪三维（P3D）案例，其电极层级域采用 3×3 四边形网格，颗粒方向上有 3 个点。我们很容易看出，左上块中的有限元离散具有更强的连通结构（在三维情况下，连通性甚至更高）。右下块由若干小型三对角矩阵组成，每个电极级网格单元对应一个。左下和右上部分对应电极层级方程与颗粒方程之间的耦合；这些部分是稀疏的，因为两者仅通过表面处的固相浓度耦合。

4.2. 预处理。线性化系统采用 GM- RES [50] 迭代求解。为确保求解过程具有可扩展性，我们将采用适当的预处理策略 [59]。良好的预条件器通常是系统矩阵的一种近似，其逆可以高效地计算或近似求得。对于耦合偏微分方程系统，考虑块结构往往是设计预条件器的关键，因为大多数现有求解器直接用于整体系统时效果不佳。

对于块系统，一种简单的策略是考虑块对角预条件器，也就是忽略方程之间的所有耦合：

$$P_J = \begin{bmatrix} A_{\phi_s,\phi_s} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & A_{\phi_e,\phi_e} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & A_{c_e,c_e} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & A_{c_s,c_s} \end{bmatrix}. \tag{4.4}$$

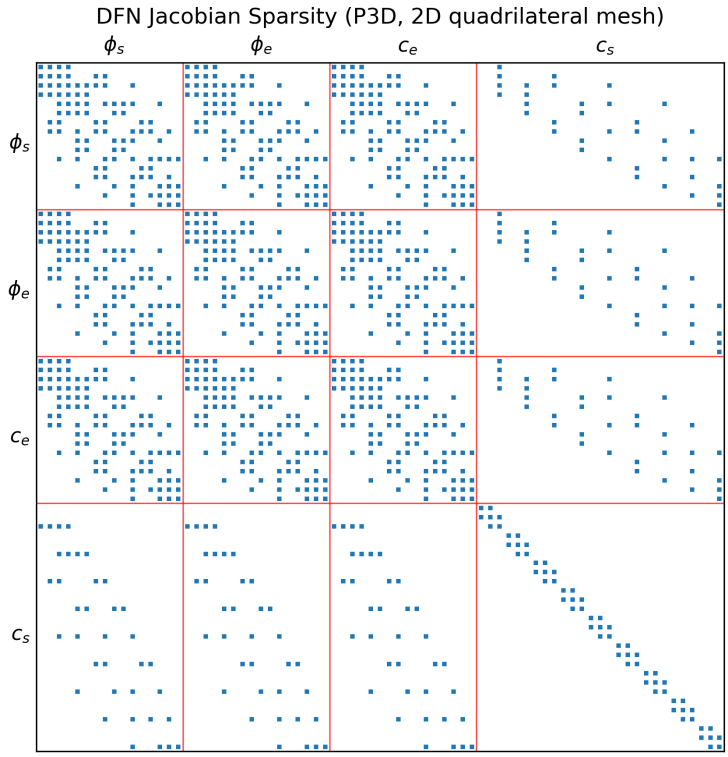


图2：对于一个 P3D 案例，其电极层级域采用 3×3四边形网格，颗粒方向上有 3 个点时，线性化系统矩阵的稀疏模式。

对 P 求逆，只需分别应用其各个块的逆：

$$P_J^{-1} = \begin{bmatrix} A_{\phi_s,\phi_s}^{-1} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & A_{\phi_e,\phi_e}^{-1} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & A_{c_e,c_e}^{-1} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & A_{c_s,c_s}^{-1} \end{bmatrix}. \tag{4.5}$$

该预条件器通常称为块雅可比（BJ），在 PETSc 中则称为加性场分裂。

一种成本更高的选项是仅忽略一半的耦合，从而得到一个块三角预条件器：

$$P_{GS} = \begin{bmatrix} A_{\phi_s,\phi_s} & 0 & 0 & 0 \\ A_{\phi_e,\phi_s} & A_{\phi_e,\phi_e} & 0 & 0 \\ A_{c_e,\phi_s} & A_{c_e,\phi_e} & A_{c_e,c_e} & 0 \\ A_{c_s,\phi_s} & A_{c_s,\phi_e} & A_{c_s,c_e} & A_{c_s,c_s} \end{bmatrix}. \tag{4.6}$$

虽然求逆 P_{GS} 需要更多运算，但它只需对每个

对角块求逆：

$$P_{GS}^{-1} = \begin{bmatrix} A_{\phi_s,\phi_s}^{-1} & 0 & 0 & 0 \\ -A_{\phi_e,\phi_e}^{-1} A_{\phi_e,\phi_s} A_{\phi_s,\phi_s}^{-1} & A_{\phi_e,\phi_e}^{-1} & 0 & 0 \\ * & * & A_{c_e,c_e}^{-1} & 0 \\ * & * & * & A_{c_s,c_s}^{-1} \end{bmatrix}, \tag{4.7}$$

其中，$*$ 条目表示由先前求逆的块组合而成的嵌套表达式。例如：

$$(P_{GS}^{-1})_{3,1} = -A_{c_e,c_e}^{-1} \left(A_{c_e,\phi_s} A_{\phi_s,\phi_s}^{-1} + A_{c_e,\phi_e} A_{\phi_e,\phi_e}^{-1} A_{\phi_e,\phi_s} A_{\phi_s,\phi_s}^{-1} \right), \tag{4.8}$$

依此类推。这种方法通常称为块高斯–赛德尔（BGS），在 PETSc 中则称为乘法场分裂。

请注意，对于一个 4×4 块矩阵，有 24 种不同的排序方式，上面所示的排序只是其中一种。在第 5.2 小节中，我们将简要讨论系统排序对 P_{GS}性能的影响。

要实现可扩展的方法，必须使用迭代法近似求解对角块的逆，而不是直接求逆。注意，电势块 A_{ϕ_s,ϕ_s} 和 A_{ϕ_e,ϕ_e}是椭圆算子，而电解液浓度块A_{c_e,c_e} 是抛物型算子，因此它们非常适合采用多重网格法 [11]。至于固相浓度块A_{c_s,c_s}，它由对应于各个网格单元的小型 $N_c \times N_c$ 三对角矩阵组成。只需分别对每个小矩阵求逆即可得到其逆；由于这些矩阵对应的是小型一维系统，因此可通过直接求解器高效完成。每个小矩阵都对应于单个单元上定义的系统，因此可以采用逐单元块雅可比，或在 PETSc 中采用点块雅可比。鉴于 A_{c_s,c_s},A_{c_s,c_s}本身就是三对角矩阵，对称高斯–赛德尔也可用作预条件器（此处未展示结果）。

在第 5 节中，我们将考察式 (4.4) 和式 (4.6) 中分别定义的块雅可比和 BGS 预条件器的可扩展性。在这两种情况下，电极级块的逆矩阵均采用单次代数多重网格（AMG）V 循环近似 [49]:

$$A_{\phi_s,\phi_s}^{-1} \approx \mathrm{AMG}(A_{\phi_s,\phi_s}), \quad A_{\phi_e,\phi_e}^{-1} \approx \mathrm{AMG}(A_{\phi_e,\phi_e}), \quad A_{c_e,c_e}^{-1} \approx \mathrm{AMG}(A_{c_e,c_e}), \tag{4.9}$$

颗粒块的逆矩阵则通过逐单元块雅可比（EBJ）计算：

$$A_{c_s,c_s}^{-1} = \mathrm{EBJ}(A_{c_s,c_s}). \tag{4.10}$$

对于 AMG，我们使用 hypre 库 [1]中的 BoomerAMG [30] 。完整的 PETSc 求解器参数见附录 B。

如第3.4小节所述，固相电势 ϕ_s 和固相浓度 c_s 是在整个区域（包括隔膜）上定义并求解的。若改为将它们定义为仅属于各个正极的独立变量，则会得到四个电极专属块，而不是$A_{\phi_s,\ \phi_s}$ 和 $A_{c_s,\ c_s}$。本文详述的预处理策略很容易适用于这种形式。采用 P_J 的加法方法基本相同，因为一个电极中定义的变量与另一个电极中的变量并不直接耦合。如果按顺序求解电极专属方程，那么采用 P_{GS} 的乘法方法会略有不同。在模拟解析微观结构时， [24]中考虑了采用电极专属块的块预条件器。

5. 结果。本节评估用于伪四维 DFN 仿真的块雅可比（BJ）和块高斯–赛德尔（BGS）预条件器。首先介绍四个空间复杂度逐渐增加的测试案例。随后分析 BGS 的块排序效应。最后给出这两种预条件器的弱扩展性和强扩展性结果。

5.1. 测试案例。我们考虑四种测试案例，其三维空间变化的复杂程度各不相同：具有均匀属性的立方单元（案例 I）、具有非均质属性的立方单元（案例 II）、导致几何形状极为扭曲的扁平化卷芯（案例 III），以及几何形状复杂的互穿陀螺结构电极（案例 IV）。

为简化起见，所有案例均采用 [41], 钴酸锂正极（正电极）和石墨负极（负电极）的材料属性。所有模型参数详见附录 C。

所有模拟均采用固定的施加电流密度，对应于以 1C 倍率进行电池放电。这相当于理论上可在一小时内完全放电，但实际达到最低电压（出于安全考虑）所需的时间会短得多。为简化起见，模拟时长设为 30 分钟，即完全放电时长的一半。这样便无需在接近最低电压时采用更小的时间步长。我们将时间步长 Δt 固定为一分钟，共 30 步。对于全耦合牛顿求解器而言，这一具有代表性的大步长仍能确保其稳定可靠地收敛，同时也能解析我们关注的宏观放电动力学。

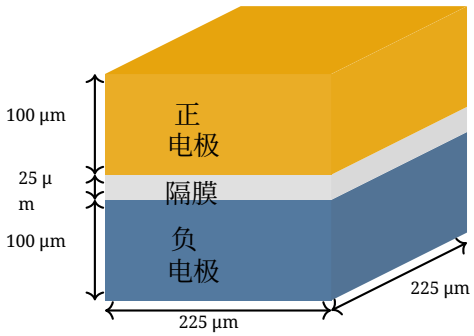


图3：案例I和II的仿真区域示意图。

案例 I：均匀立方电池。我们的第一个测试案例是一个简单的立方电池，其电极厚度为 100µm，隔膜厚度为 25µm，如图3所示。虽然这并不代表典型的运行条件，但为了在原本的一维问题中引入三维空间变化，施加电流密度被设定为二维高斯场。令 I_{app} 为参考施加电流，通常根据活性材料的质量负载计算。正极集流体上的空间变化施加电流密度 i_{app} Γ_p

is given by

(5.1)

$$i_{\text{app}}(y,z) = \frac{I_{\text{app}}}{\displaystyle\int_{\Gamma_p} \exp\left(-\frac{(y-y_0)^2}{2\sigma_y^2} - \frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}\right) \mathrm{d}S} \exp\left(-\frac{(y-y_0)^2}{2\sigma_y^2} - \frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}\right),$$

其中 $(y_0,\ z_0)$ 表示集流体表面的中心，σ_y和 σ_z 分别表示沿 y–和 z–方向的展宽。归一化处理确保

(5.2)
$$\int_{\Gamma_p} i_{\text{app}}(y,z)\,\mathrm{d}\mathbf{s} \;=\; I_{\text{app}},$$

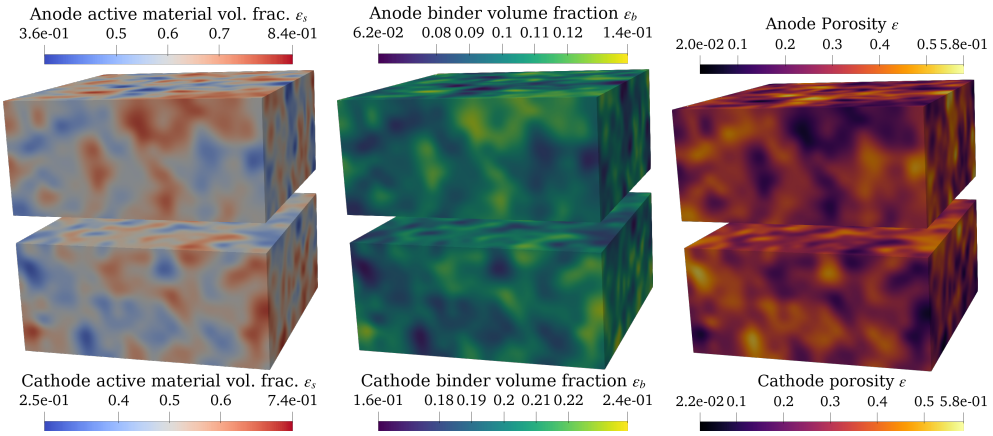
因此，平均电流密度为 I_{app}/A，其中 $A = \int_{\Gamma_p} \mathrm{d}S$ 是集流体的面积。高斯分布的中心位于集流体表面的中心，

(5.3)
$$y_0 = \tfrac{1}{2}L_y, \qquad z_0 = \tfrac{1}{2}L_z,$$

标准差取为集流体尺寸的固定比例，

(5.4)
$$\sigma_y = 0.1\,L_y, \qquad \sigma_z = 0.1\,L_z,$$

其中 $L_y = L_z = 225\mu\text{m}$ 分别是集流体沿 y– 和 z–方向的长度。



(a) 活性材料体积分数。 (b) 粘结剂体积分数。 (c) 孔隙率。

图 4：案例 II 的空间变化材料属性。

案例 II：空间变化属性。沿用案例 I 的相同几何结构，我们现在通过引入材料属性的空间异质性，在区域内加入空间变化。对于伪二维DFN模型，通常假设属性为常数，因为其他两个空间维度已经进行了均质化。通常，通过解析微观结构（活性颗粒、粘结剂等）的模拟来捕捉空间变化属性 [66, 32, 18]

不过，均质化多孔电极理论模拟可以捕捉某些电极尺度异质性（而非颗粒尺度异质性） [43, 47]。在此案例中，电流均匀地施加在集流体表面。

为材料体积分数指定平滑且具有空间相关性的非均质性，我们在区域 Ω 上构造一个滤波随机场。在 Ω 上定义分辨率为 h_c 的粗结构网格，其节点为 $\{(x_i,\ y_j,\ z_k)\}_{i,\ j,\ k}$。在该粗网格上抽取相互独立的标准高斯样本 $g_{ijk} \sim \mathcal{N}(0,\ 1)$，以定义 Ω 上的分片三线性插值函数 $g(x)$。为引入长度尺度为 h_c 的空间相关性，我们应用反应扩散型滤波器 [36] ，通过求解以下方程得到平滑场 $\tilde{g}$

$$(I - h_c^2 \nabla^2)\, \tilde{g} = g \quad \text{in } \Omega,$$

在用于电池模拟的更精细网格上进行，从而得到高频成分较少的函数 $\tilde{g}(x)$。这是一个 Mat´ern 型高斯随机场 [16, 23]。

表 1：固体组分体积分数的指定均值和方差数值。

组分	**均值** $(\bar{\varepsilon}_i)$	**方差** (σ_i^2)
活性材料（正极）	0.50	0.004
粘结剂（正极）	0.20	0.0001
活性材料（阳极）	0.60	0.004
粘结剂（阳极）	0.10	0.0001

随后对场 $\tilde{g}$ 进行归一化，使其符合规定的统计矩。令 $\bar{\tilde{g}} = \frac{1}{|\Omega|}\int_\Omega \tilde{g}(x)\,\mathrm{d}x$ 以及 $\mathrm{Var}[\tilde{g}] = \frac{1}{|\Omega|}\int_\Omega (\tilde{g}(x) - \bar{\tilde{g}})^2\,\mathrm{d}x$。我们定义缩放后的场

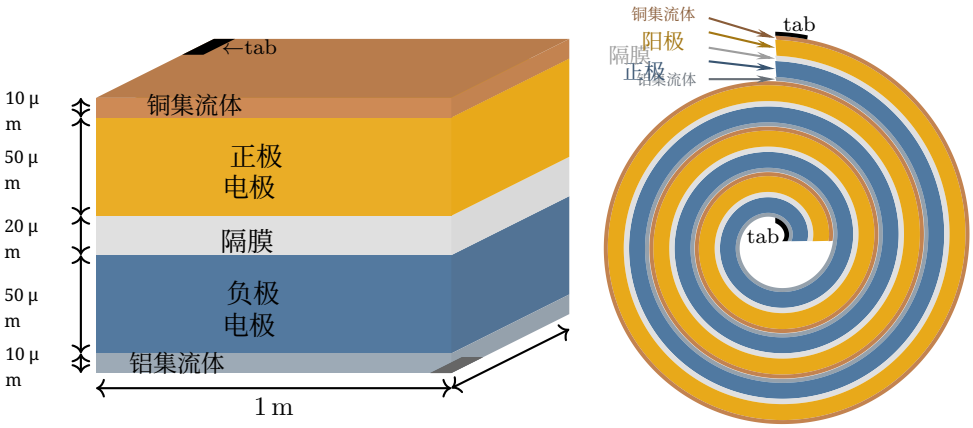
$$\varepsilon_i(x) = \bar{\varepsilon}_i + \sqrt{\frac{\sigma_i^2}{\mathrm{Var}[\tilde{g}]}}\,(\tilde{g}(x) - \bar{\tilde{g}}),$$

使得 $\varepsilon_i(x)$ 的均值为 $\bar{\varepsilon}_i$ ，方差为 σ_i^2。正极和阳极区域中的活性材料和粘结剂体积分数 ε_s，ε_b，根据表 1 给出的（$\bar{\varepsilon}_i$，σ_i^2）数值生成。随后计算局部孔隙率：$\varepsilon(x) = 1 - \varepsilon_s(x) - \varepsilon_b(x)$。

案例 III：扁平化卷芯。典型的圆柱形锂离子电芯采用卷芯结构，即将电极、隔膜和集流体层叠后绕中央芯轴卷绕而成，如图 5b 所示。本文采用一种扁平化卷绕体几何结构，通过将螺旋结构展开为平面堆叠结构得到（图 5a）。由于堆叠厚度相较于曲率半径可忽略不计，忽略曲率对相关电化学行为的影响很小。为简化起见，模型采用单面电极，而非实际电芯中常用的、更紧凑的双面结构。

仿真区域的尺寸如图5a所示，未按比例绘制。该仿真区域具有很强的各向异性：$1 \times 10^{-4}\,\mathrm{m} \times 0.05\mathrm{m} \times 1\,\mathrm{m}$。如第5.4小节所述，用于强扩展研究的所得六面体网格同样具有很强的各向异性。

在此案例中，我们明确对集流体进行建模，而不像其他案例那样将其视为边界表面，因为施加电流仅通过局部极耳注入。在这些子域中，仅求解固相电势



(a) 扁平化卷芯示意图。 （b）卷芯横截面示意图

。

图 5：案例 III 中扁平化卷芯仿真区域的示意图。示意图未按比例绘制（注意（a）中的尺寸）。（b）中的曲率仅用于说明，在仿真中未予考虑。

(2.8)，并按照附录 C 中的说明，设定零孔隙率和较高的固相电导率。施加电流和接地电势边界条件 (2.12) 与 (2.13) 施加在集流体上尺寸为 5 mm $\times$ 10 mm 的极耳上。这些极耳位于区域的两端，分别对应卷绕电芯的顶部/底部和内侧/外侧。尽管集流体的电导率很高，其有限尺寸仍会导致电流分布不均匀，进而产生三维空间变化。

严重的各向异性会影响代数多重网格的性能。因此，对于此案例，BoomerAMG 采用了更为保守的参数（例如，较不激进的粗化设置），详见附录 B。此外，我们将 GMRES 的重启大小从默认值 30 增加到 100。

案例 IV：互穿陀螺结构。由于具有较高的比表面积和可调控的传输路径，互穿电极结构最近在储能文献中受到了越来越多的关注，从而能够构建不受离子传输限制的厚电池 [65, 64, 61, 58]。

我们在物理计算区域 $\Omega = [0, L_x] \times [0, L_y] \times [0, L_z]$中生成三重周期极小曲面（TPMS）电极几何结构（$L_x$，$L_y$，$L_z$）=(1 mm，1 mm 0.5mm)，方法是构造由陀螺曲面表示导出的有符号距离场。引入无量纲坐标 $\hat{x} = x/L_x$，$\hat{y} = y/L_y$，$\hat{z} = z/L_z$，两个电极的相移陀螺水平集函数为

(5.5) $s_n(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}) = \sin(\pi\hat{x})\cos(\pi\hat{y}) + \sin(\pi\hat{y})\cos(\pi\hat{z}) + \sin(\pi\hat{z})\cos(\pi\hat{x}) - 1.3,$

(5.6) $s_p(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}) = \sin(\pi\hat{x})\cos(\pi\hat{y} + \pi) + \sin(\pi\hat{y} + \pi)\cos(-\pi\hat{z}) + \sin(-\pi\hat{z})\cos(\pi\hat{x}) - 1.3.$

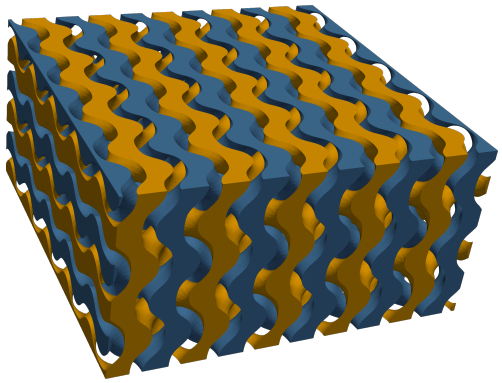


图 6：案例 IV 的仿真区域，其中 TPMS 旋转曲面电极的负极（阳极）为橙色，正极（正极）为蓝色，中间的空隙填充有电解质。

相应的指示区域由有符号距离不等式定义

$$|s_n| \le \frac{t}{2}, \qquad |s_p| \le \frac{t}{2}, \tag{5.7}$$

其中 $t = 1.104$，得到分别表示阳极（Ω_n）和正极（Ω_p）相的不相交区域。

为获得与电极–电解质界面相 conforming 的网格，我们使用 MFEM 框架 [4]求解目标矩阵优化范式（TMOP）问题 [21] 。该优化过程常用于水平集拓扑优化，在使单元面与材料界面对齐的同时，最小化网格畸变 [53]。这是 [17]中所使用电极和网格的更大版本。

5.2. 系统排序对块 Gauss-Seidel 预条件子的影响。如第 4.2 小节所述， 4×4 块系统有 24 种不同的排序方式，因此在（4.6）式中，块 Gauss-Seidel 预条件子也有 24 种不同的选择， P_{GS} 。我们针对四个案例测试了全部 24 种排序方式，并测量了第 5.4 小节强扩展性研究中所使用的 200 个处理器仿真的 Krylov 迭代次数。

在所有测试中，最佳排序与最差排序之间的差异都很小：迭代次数仅相差 6–8%，而排名前五或前六的排序之间差异不到 2%。两个排列（ϕ_e， c_s， ϕ_s， c_e）和（c_e， ϕ_e， c_s， ϕ_s）在所有几何结构中始终排名第一或第二，这表明最有效的排序对于网格结构和局部非均质性具有稳健性。因此，下面报告的所有弱扩展性和强扩展性结果均采用（ϕ_e， c_s， ϕ_s， c_e）排序。由于即使最不利的排序也只会使迭代次数增加约 6–8%，乘法块预条件子的总体性能并不高度依赖于排序选择。需要注意的是，如果材料参数或运行条件显著改变交叉耦合的相对强度，最优排序可能会有所不同，这可能会影响某些排序的性能。

5.3. 弱扩展性。我们通过在增加处理器数量的同时，将每个处理器的局部问题规模固定在约 1.4×10^5 个自由度，来研究块雅可比和 BGS 预条件器的弱扩展性。由于案例 I 的网格细化较为简单，因此我们选用该案例进行弱扩展研究。图 7 展示了总

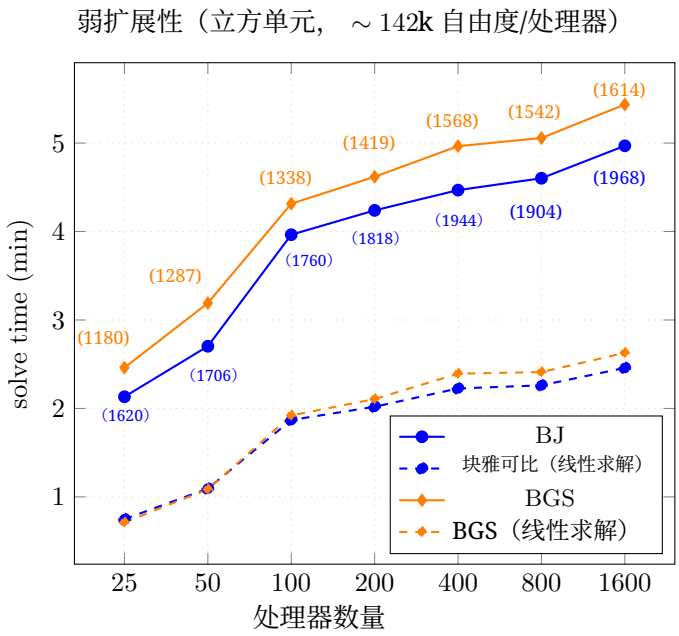


图7：案例 I 中每个处理器约有 142k 个自由度、包含 30 个时间步长时的弱扩展性性能。括号中给出了 GMRES 迭代总次数。

非线性求解时间、线性求解所用时间以及相应的 GMRES 迭代次数。对于块雅可比和 BGS，处理器数量从 25 增至 1600 时，GMRES 迭代次数仅略有增加（块雅可比约增加 36%，BGS 约增加 21%），表明随着全局问题规模增大，这些预条件器仍能保持有效性。运行时间的其余增长主要源于通信开销。处理器数量从 50 增至 100 时的跃升，对应于在同一节点上从使用一个插槽转为使用两个插槽。处理器数量从 100 增至 200 时的增长，则反映了通信方式从节点内通信转为节点间通信。此后，处理器数量从 200 增至 1600 时，总求解时间仅小幅增长（约 17%），表明在此范围内，两种预条件器都实现了近乎理想的弱扩展性。块雅可比预条件器的总用时始终更短，但 BGS 的线性迭代次数略低。

5.4. 强扩展性。现在，我们针对每个测试案例开展强扩展性研究，即固定问题规模并增加处理器数量。处理器数量从 200 个（2 个节点）开始，每次加倍，直至达到 1600 个处理器（16 个节点）。问题规模的选取使其接近 200 个处理器案例在内存需求限制下所允许的最大规模。请注意，在这种规模下，直接求解器会因内存需求而无法使用，因此我们只能测试迭代求解器。

表2总结了所有测试案例的网格和自由度，包括各案例采用的粒子级离散化。案例 I–III 使用六面体单元，其中案例 I 和 II 使用相同的网格。各方向上的单元均匀分布。对于案例 I 和 II，电池厚度方向上有 207 个单元，因此单元恰好分别覆盖正极、隔膜和负极区域。其他方向的单元数为 205，从而仅有

表2：所有测试案例的网格和自由度汇总。

Case	Mesh	单元	电极自由度	N_c	粒子自由度	总自由度
I	Hex	8.7×10^6	2.6×10^7	10	8.7×10^7	1.13×10^8
II	Hex	8.7×10^6	2.6×10^7	10	8.7×10^7	1.13×10^8
III	Hex	8.5×10^6	2.6×10^7	10	8.5×10^7	1.12×10^8
IV	Tet	3.6×10^7	1.8×10^7	6	2.18×10^8	2.37×10^8

不到 870 万个单元，因此电极级自由度超过 2600 万。在颗粒方向上，我们使用 $N_c = 10$ 个点。由于在我们的实现中，这些点对应单元级未知量，因此颗粒级自由度略低于 8700 万，总自由度超过 1.13 亿。对于案例 III，我们在电池厚度方向上使用 56 个单元，在电池高度方向上使用 85 个单元，并沿卷材长度方向使用 1800 个单元。由此得到超过 850 万个单元，因此电极级自由度超过 2600 万。同样，我们选取 $N_c = 10$，从而得到 8500 万个颗粒级自由度，总自由度达到 1.12 亿。

对于案例 IV，采用了包含超过 3600 万个单元的四面体网格，因此电极级自由度超过 1800 万。对于此案例，我们选择了较少的 $N_c = 6$ 颗粒方向上的点数。不过，由于这些是单元级未知量，颗粒级自由度约为 2.18 亿，总自由度达到 2.37 亿。回顾第 4.2 小节可知，颗粒系统是三对角的，因此与电极级系统相比，它贡献的非零元并不多。

案例 I 的强扩展性结果如图 8 所示。随着处理器数量从 200 增加到 1600，块雅可比和 BGS 的求解时间均显著缩短。块雅可比的总求解时间从 200 个处理器时的约 1028 秒降至 1600 个处理器时的 166 秒，对应的加速比为 $6.2\times$，相对于理想 $8\times$ 扩展性的并行效率为 0。78。BGS 也呈现类似趋势，在相同范围内从 1193 秒降至 184 秒，对应的加速比为 $6.5\times$，并行效率为 0。81。线性求解时间也遵循相同规律，GMRES 迭代次数基本保持不变（块雅可比的变化低于 15%，BGS 的变化低于 20%），这表明预条件器在网格分区下的性能相对稳健。尽管迭代次数略高，块雅可比始终实现更短的墙钟时间，而 BGS 的单次迭代成本更高。处理器数量从 800 增至 1600 时，总求解时间增长得更快，表明通信成本更高。请注意，处理器数量为 800 时，每个处理器约有 142k 个自由度，这在弱扩展研究中被发现是较好的平衡点。每个处理器有 71k 个自由度时，通信开始成为瓶颈。

案例 II 中，非均质电极的强扩展性结果如图 9 所示。与均质案例 I 相比，BJ 和 BGS 通常需要多约 5% 的 GMRES 迭代次数，这反映出活性材料和粘结剂体积分数的空间变化带来了轻微的求解难度增加。尽管如此，两种预条件器仍表现出良好的并行可扩展性。对于 BJ 预条件器，总求解时间从使用 200 个处理器时的约 1140 秒降至使用 1600 个处理器时的 220 秒，对应的加速比为 $5.2\times$，并行效率为 0。65。BGS 预条件器也呈现类似的下降趋势，在相同处理器数量范围内，求解时间从 1292 秒降至 221 秒，对应的加速比为 $5.9\times$，并行效率为 0。73。线性求解时间呈现几乎

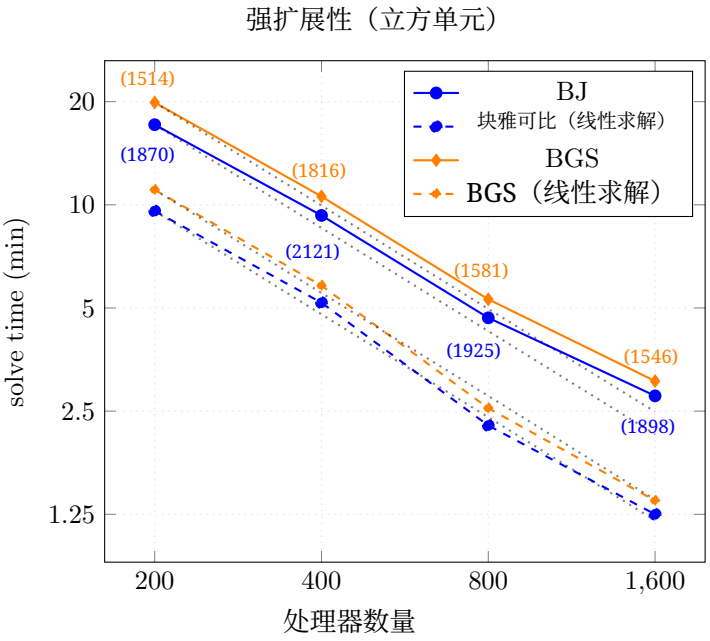


图8：案例 I 中均匀立方体单元问题（113M 个自由度）的强扩展性计时结果。括号中给出了 GMRES 的总迭代次数。理想扩展性以点线表示。

相同的趋势，且随着处理器数量增加，迭代次数基本保持不变，证实尽管引入了空间相关的非均质性，预条件器仍然稳健。与案例 I 一样，BJ 的墙钟时间最短，但 BGS 的并行效率与之相当，且迭代次数略少。同样，当处理器数量达到 1600 时，通信开始成为瓶颈。

对于案例 III，扁平化卷绕体几何结构的强扩展性结果如图 10 所示。高度各向异性的区域和网格（1×10^{-4} m $\times$ 0.05m$\times$ 1m）给求解器性能带来了额外挑战。BJ预条件器将总求解时间从使用 200 个处理器时的约 2300 秒缩短至使用 1600 个处理器时的 368 秒，对应于 $6.3\times$ 加速比，相对于理想 $8\times$ 扩展性的并行效率为 0.79。BGS预条件器始终更快，在相同处理器范围内将求解时间从 2122 秒缩短至 271 秒，获得了 $7.8\times$ 加速比，效率为 0.97。此案例中的各向异性降低了代数多重网格的性能，导致 GMRES 迭代次数大幅增加：BGS每次牛顿迭代需要 30–40 次，BJ每次牛顿迭代需要 50–80 次。在某些情况下，单个牛顿步需要 100–300 次 GMRES 迭代。为评估这种迭代次数的增长究竟是块预条件策略本身固有的，还是由多重网格性能不佳导致的，我们在较小的问题上进行了额外实验（未展示），将块子问题上的代数多重网格替换为稀疏直接（LU）求解器。在这些测试中，每次牛顿迭代的 GMRES 迭代次数降至约 10 次，这表明此处观察到的迭代次数增加，主要归因于代数多重网格在强各向异性区域中的局限性。然而，对于大规模模拟，LU 分解的内存需求使这种方法不切实际。

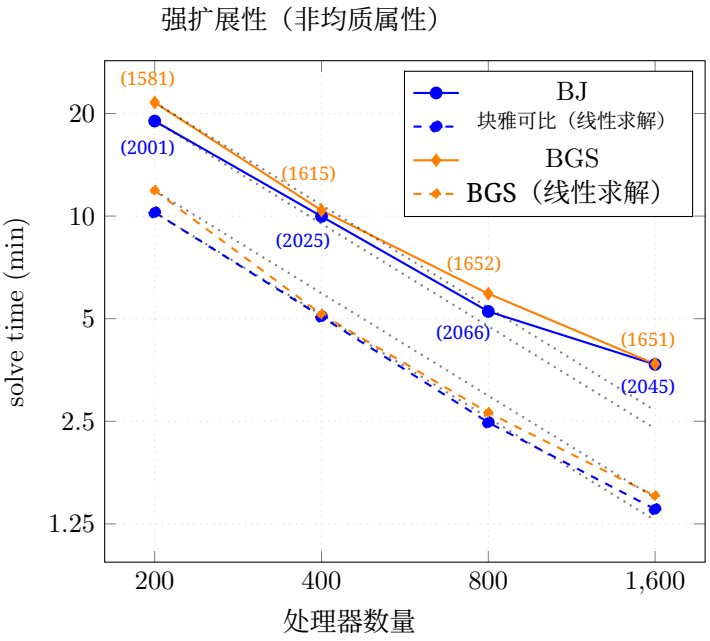


图 9：案例 II（具有非均质属性的立方单元，113M 个自由度）的强扩展性计时结果。括号中给出了 GMRES 的总迭代次数。虚线表示理想扩展性。

总体而言，两种预条件器均保持了良好的并行可扩展性，其中 BGS 由于迭代次数较少而具有更短的计算时间。由于此案例中的总求解时间主要由线性求解器决定，而该求解器本身具有良好的扩展性，因此尽管 Krylov 迭代次数有所增加，整体强扩展性看起来仍优于其他案例。这些结果表明，针对高度各向异性几何结构设计的多重网格方法，或可进一步提升卷绕式电芯等案例中求解器的稳健性和效率。

最后，图 11 展示了案例 IV 中互穿陀螺面几何的强扩展性结果。对于 BJ预条件器，总求解时间从 200 个处理器时的约 1274 秒降至 1600 个处理器时的 272 秒，对应于 $4.7\times$加速比，并行效率为 0.59。BGS预条件器在所有处理器数量下仍然较慢，在相同范围内将求解时间从 1833 秒降至 299 秒，获得 $6.1\times$ 加速比，并行效率为 0.76。不过，随着核心数量增加，两种预条件器对网格分区的敏感性都增强，尤其是在 1600 个处理器时，迭代次数大幅上升（BJ 从 2054 增至 3574，BGS 从 1757 增至 2962）。这种敏感性与 TPMS 的复杂几何形状以及所采用的四面体网格有关；四面体网格的每个单元自由度较少，因此相比六面体网格案例更早暴露出通信瓶颈。

6. 结论。我们开发并评估了可扩展的块预条件策略，用于在三维区域中全隐式求解伪四维 Doyle–Fuller–Newman

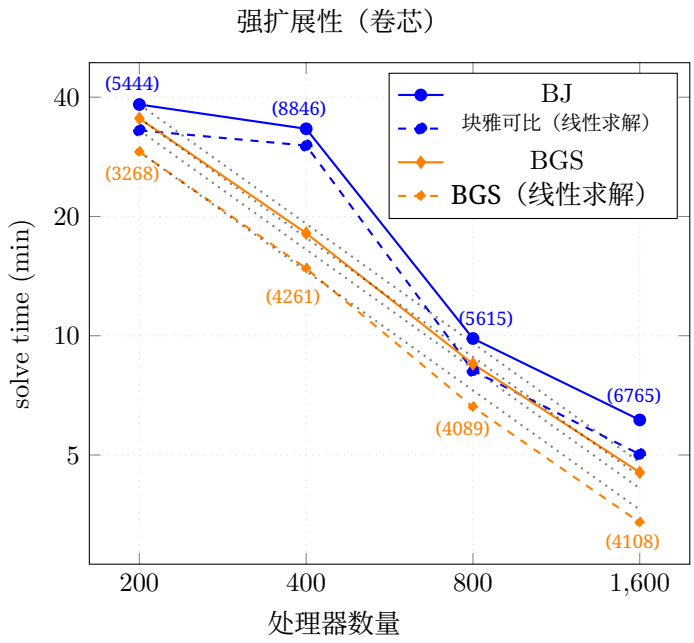


图 10：案例 III（扁平化卷芯问题，1.12 亿个自由度）的强扩展性计时结果。括号中给出了 GMRES 的总迭代次数。理想扩展性以点线表示。

（DFN）电池模型。利用耦合的电极尺度方程和颗粒尺度方程的块结构，我们构造了块对角预条件器和块三角预条件器，将代数多重网格应用于电极层级算子，并将高效的直接求解器应用于颗粒尺度扩散块。

针对多种电池单体几何结构开展了广泛的可扩展性实验，包括均质与非均质立方电池、扁平果冻卷结构以及互穿式螺旋面电极。在所有案例中，所提出的预条件子均实现了 GMRES 的稳健收敛和良好的并行可扩展性，高效求解了包含多达数亿个未知量的系统。块对角方法通常具有更短的墙钟时间，而块三角变体则实现了更少的迭代次数，尤其适用于高度各向异性区域。

这些结果表明，采用配备适当块预条件器的迭代求解器，可以高效且稳健地大规模执行完全耦合的三维伪四维 DFN 仿真。这提升了高保真电池建模在真实电池单体结构和运行条件下的实际应用能力。

附录A. 颗粒方程的实现细节。

Firedrake 要求使用有限元方法求解方程。此外，目前还没有显而易见的方法来为颗粒方程实现第 4 个伪维度。因此，我们将把离散化固相浓度的每个离散数值视为有限元函数，并使用这些函数手动实现有限差分格式。

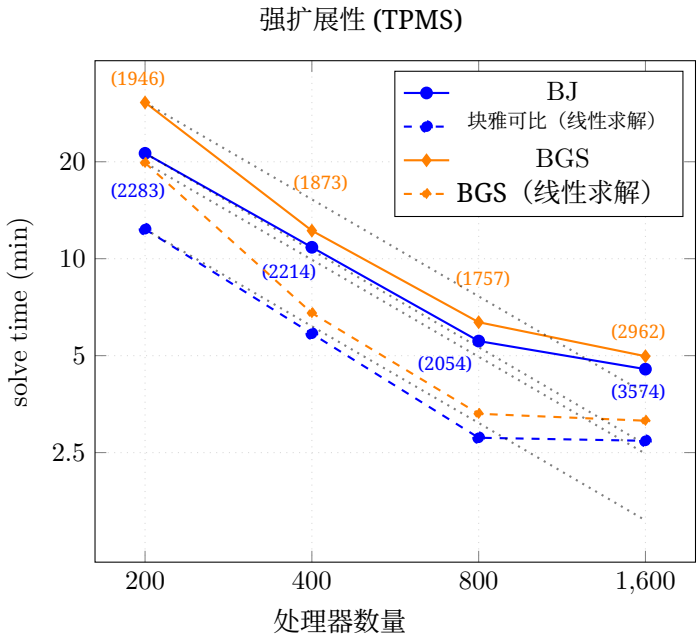


图 11：案例 IV（交错陀螺体电极问题，237M 个自由度）的强扩展性计时结果。括号中给出了 GMRES 迭代总次数。虚线表示理想扩展性。

我们定义一个向量值函数空间 $\mathcal{V}_c = V_h^{N_c}$，其中每个分量对应一个径向位置处的固相浓度。固相浓度场表示为 $\mathbf{c}_s \in \mathcal{V}_c$，其测试函数为 $\mathbf{v} \in \mathcal{V}_c$，分量为 c_i, v_i。

我们通过在变分意义下对每个径向节点施加有限差分残差，构造弱形式：

$$\int_{\Omega_n \cup \Omega_p} \left(\frac{\partial c_i}{\partial t} - \mathcal{L}_h(\mathbf{c}_s)_i \right) v_i \, \mathrm{d}\mathbf{x} = 0, \quad \text{for } i = 1, \ldots, N_c, \tag{A.1}$$

其中，$\mathcal{L}_h(\mathbf{c}_s)_i$ 表示径向拉普拉斯算子的有限差分近似，其中包括边界条件（参见 (3.4)–(3.6)）。

因此，完全耦合的变分问题为：求$\mathbf{c}_s \in \mathcal{V}_c$, $c_e, \phi_e \in V_h$和 $\phi_s \in V_h^0$，使得对于所有测试函数$\mathbf{v} \in \mathcal{V}_c$, $v_{c_e}, v_{\phi_e} \in V_h$和 $v_{\phi_s} \in V_h^0$，以下 (A.1) 和 (3.9)–(3.11) 均成立。

在 Firedrake 中，通过定义$\mathbf{c}_s$ 并使用 VectorFunctionSpace、对各分量进行符号化有限差分算子计算，以及为每个径向节点关联一个测试函数，可直接实现弱形式 (A.1)。由于径向点数 N_c 较少（通常为 5–20），这种方法在计算上仍然高效，并能保持整个电池系统统一的有限元表示。

附录 B。求解器参数。

这里给出了用于构建第 4 节所述求解器的 PETSc 选项。请注意，我们使用的是非线性求解器的默认参数。

清单 1：PETSc 求解器选项。

```
% Outer Krylov solver
"ksp_type": "gmres",
"ksp_gmres_restart": 30, # or 100 for Case III
% Block preconditioner
"pc_type": "fieldsplit",
"pc_fieldsplit_type": "multiplicative", % or "additive"
"mat_type": "aij",
% Ordering used for the results in this paper
"fieldsplit_0_fields": i_phie, # index for phi_e
"fieldsplit_1_fields": i_cs, # index for c_s
"fieldsplit_2_fields": i_phis, # index for phi_s
"fieldsplit_3_fields": i_ce, # index for c_e
% AMG parameters. Repeat for each electrode-level block
% For Cases I, II, IV
"fieldsplit_[i]": { % replace i by i_ce, i_phie, and i_phis
    "pc_type": "hypre",
    "pc_hypre_boomeramg": {
        "strong_threshold": 0.7,
        "coarsen_type": "HMIS",
        "agg_nl": 3,
        "interp_type": "ext+i",
        "agg_num_paths": 5,
    },
},
% For Case, III
"fieldsplit_[i]": {
    "pc_type": "hypre",
        "pc_hypre_boomeramg": {
          "strong_threshold": 0.9,
          "coarsen_type": "HMIS",
            "agg_nl": 0,
          "interp_type": "ext+i",
          },
      }
% Preconditioner for particle system
"fieldsplit_[i_cs]": {
    "pc_type": "pbjacobi",
},
```

附录 C. 模型参数。

本附录汇总了第 2 节所述的 Doyle–Fuller–Newman（DFN）模型中使用的所有参数。所有参数数值均直接取自 PyBaMM [54]。

表 3：普适物理常数。

符号	描述	数值	Unit
F	法拉第常数	96485.33	C mol^{-1}
R	理想气体常数	8.31446	J·mol^{-1}·K^{-1}
T	温度	298.15	K

表4：电解液参数。

符号	描述	数值	Unit
$c_{e,0}$	初始电解液浓度	1000	$\mathrm{mol\,m^{-3}}$
t_+^0	阳离子迁移数	0.4	-
b	Bruggeman 指数	1.5	-
$D_e(c_e,\ T)$	体相电解质扩散率	见 (C.1)	-
$\kappa(c_e,\ T)$	体相电解质电导率	见 (C.2)	-

(C.1)

$$D_e(c_e,T) = 5.34\times10^{-10}\exp\!\left(-0.65\frac{c_e}{1000}\right)\exp\!\left(\frac{E_{D_e}}{R}\left(\frac{1}{298.15}-\frac{1}{T}\right)\right),$$

(C.2)

$$\kappa(c_e,T) = \exp\!\left(\frac{34700}{R}\left(\frac{1}{298.15}-\frac{1}{T}\right)\right)\left(0.0911+1.9101c-1.052c^2+0.1554c^3\right),$$

其中 $c = c_e/1000$ 为电解液浓度，单位为 $\mathrm{mol\,L^{-1}}$ 和$E_{D_e} = 37\,040\,\mathrm{J\,mol^{-1}}$。

表 5：正极（正极）参数。

符号	描述	数值	Unit
ε_s	活性材料体积分数	0.5	-
ε	孔隙率	0.3	-
σ	固相电导率	10	$\mathrm{S\,m^{-1}}$
k	反应速率常数	6×10^{-7}	$\mathrm{A/m^2\,(m^3/mol)^{1.5}}$
$\alpha_a = \alpha_c$	电荷转移系数	0.5	-
$c_{s,\max}$	最大固相浓度	5.12×10^4	$\mathrm{mol\,m^{-3}}$
$c_{s,0}$	初始固相浓度	3.07×10^4	$\mathrm{mol\,m^{-3}}$
a	比界面面积	1.5×10^5	$\mathrm{m^2\,m^{-3}}$
D_s	固相扩散率	1.0×10^{-13}	$\mathrm{m^2\,s^{-1}}$
R_s	颗粒半径	1.0×10^{-5}	m
U_{ocp}	开路电势	参见 (C.3)	-

有效传输系数通过布鲁格曼修正获得，如第 2 节所述。

界面动力学使用 $U_{\mathrm{ocp}}(c_s^{\mathrm{surf}})$，其值是颗粒表面浓度的函数。令（表面）化学计量比

$$\theta = \frac{c_s^{\mathrm{surf}}}{c_{s,\max}}.$$

表 6：阳极（负极）参数。

符号	描述	数值	Unit
ε_s	活性材料体积分数	0.6	-
ε	孔隙率	0.3	-
σ	固相电导率	100	$\mathrm{S\,m^{-1}}$
k	反应速率常数	2×10^{-5}	$\mathrm{A/m^2\,(m^3/mol)^{1.5}}$
$\alpha_a = \alpha_c$	电荷转移系数	0.5	-
$c_{s,\max}$	最大固相浓度	2.50×10^4	$\mathrm{mol\,m^{-3}}$
$c_{s,0}$	初始固相浓度	2.00×10^4	$\mathrm{mol\,m^{-3}}$
a	比界面面积	1.8×10^5	$\mathrm{m^2\,m^{-3}}$
D_s	固相扩散率	3.9×10^{-14}	$\mathrm{m^2\,s^{-1}}$
R_s	颗粒半径	1.0×10^{-5}	m
U_{ocp}	开路电势	见 (C.4)	-

表7：隔膜参数。

符号	描述	数值	Unit
ε	孔隙率	1.0	-
σ	固相电导率	$0^\dagger$	$\mathrm{S\,m^{-1}}$

† 这是物理值；出于数值计算的考虑，有效固相电导率 σ_{eff} 采用一个较小的非零值。详情请参见第3.4小节。

正极（$LiCoO_2$）的开路电势为

$$
\begin{aligned}
U_{\mathrm{ocp}}(\theta) = {} & 2.16216 + 0.07645 \tanh\Big(30.834 - 54.4806\,\tilde{\theta}\Big) \\
& + 2.1581 \tanh\Big(52.294 - 50.294\,\tilde{\theta}\Big) \\
& - 0.14169 \tanh\Big(11.0923 - 19.8543\,\tilde{\theta}\Big) + 0.2051 \tanh\Big(1.4684 - 5.4888\,\tilde{\theta}\Big) \\
& + 0.2531 \tanh\left(\frac{-\tilde{\theta} + 0.56478}{0.1316}\right) - 0.02167 \tanh\left(\frac{\tilde{\theta} - 0.525}{0.006}\right),
\end{aligned} \tag{C.3}
$$

˜其中 $\theta = 1.062\,\theta$。

阳极（石墨）的开路电势为

$$\begin{aligned} U_{\mathrm{ocp}}(\theta) = {} & 0.194 + 1.5\exp(-120\,\theta) + 0.0351\tanh\left(\frac{\theta-0.286}{0.083}\right) \\ & - 0.0045\tanh\left(\frac{\theta-0.849}{0.119}\right) - 0.035\tanh\left(\frac{\theta-0.9233}{0.05}\right) \\ & - 0.0147\tanh\left(\frac{\theta-0.5}{0.034}\right) - 0.102\tanh\left(\frac{\theta-0.194}{0.142}\right) \\ & - 0.022\tanh\left(\frac{\theta-0.9}{0.0164}\right) - 0.011\tanh\left(\frac{\theta-0.124}{0.0226}\right) \\ & + 0.0155\tanh\left(\frac{\theta-0.105}{0.029}\right). \end{aligned} \tag{C.4}$$

表8：案例 III 的集流体参数。

材料	描述	数值	Unit
铝	电导率	3.77×10^7	$\mathrm{S\ m^{-1}}$
铜	电导率	5.96×10^7	$\mathrm{S\ m^{-1}}$

为了定义对应于 1C 放电的施加电流，我们根据每个多孔电极中的活性材料锂库存计算理论 （即最大）电池容量。设 V_n 和 V_p 分别为负极和正极区域的体积。给定固相体积分数 $\varepsilon_{s,\ i}$ 以及固相中的最大锂浓度 $c_{s\,i}^{\max}$，（单位为每 $\mathrm{molm^{-3}}$ 固体），电极 i 的理论容量（单位为安时）计算如下

$$Q_i \ = \ \frac{F}{3600}\,\varepsilon_{s,i}\,V_i\,c_{s,i}^{\max}, \qquad i \in \{n, p\}, \tag{C.5}$$

其中为常数，因子 3600 用于将库仑转换为安时。理论电池容量取两个电极容量中的较小值，

$$Q \ = \ \min\{Q_n, Q_p\}, \tag{C.6}$$

因此，限制性电极决定了最大可循环锂库存。

最后，对于给定的倍率 C，我们将施加电流的幅值定义为

$$I_{\mathrm{app}} \ = \ \mathrm{C}\,Q, \tag{C.7}$$

其中 $\mathrm{C} \ = 1$ 在所有模拟中均取定。

请注意，在我们的配置中，两极具有相同的几何体积和固相体积分数，因此 $Q_n < Q_p$ ，这是因为石墨负极的最大锂浓度较低。相比之下，商用锂离子电池通常采用过量设计的负极，使正极成为容量限制因素，且$Q_p < Q_n$。

[1] *hypre: High performance preconditioners*。 https://computation.llnl.gov/projects/hypre-scalable-linear-solvers-multigrid-methods. [2] C. Aiken, N. Kowalski, R. C. Fitzner, S. Trussler, J. Harlow, E. J. Butler, and J. Dahn , *Tracking electrolyte motion in cylindrical Li-ion cells using moment of inertia measurements* 170 2023 040529, , Journal of the Electrochemical Society, ( ), p. https: //doi.org/10.1149/1945-7111/acce72. [3] J. M. Allen, J. Chang, F. L. Usseglio-Viretta, P. Graf, and K. Smith, *A segregated approach for modeling the electrochemistry in the 3-D microstructure of Li-ion batteries and its acceleration using block preconditioners*, 科学计算期刊, 86 (2021), p. 42, https://doi.org/10.1007/s10915-021-01410-5. [4] R. Anderson, J. Andrej, A. Barker, J. Bramwell, J. S. Camier, J. Cerveny, V. Dobrev,Y. Dudouit A. Fisher T. Kolev W. Pazner M. Stowell V. Tomov I. Akkerman , , , , , , ,J. Dahm D. Medina and S. Zampini *MFEM: A modular finite element methods library* , , , , Computers and Mathematics with Applications, 81 (2021), pp. 42–74, https://doi.org/10. 1016/j.camwa.2020.06.009. [5] S. Balay, S. Abhyankar, M. F. Adams, S. Benson, J. Brown, P. Brune, K. Buschelman, E. Constantinescu L. Dalcin A. Dener V. Eijkhout J. Faibussowitsch W. D. , , , , , , , , , , , , Gropp V. Hapla T. Isaac P. Jolivet D. Karpeev D. Kaushik M. G. Knepley F. Kong S. Kruger D. A. May L. C. McInnes R. T. Mills L. Mitchell T. Munson , , , , , , , J. E. Roman K. Rupp P. Sanan J. Sarich B. F. Smith H. Suh S. Zampini H. Zhang , , , , , , , , H. Zhang and J. Zhang 21 39 , , *PETSc/TAO users manual*, 技术报告 ANL- / - 修订版 3.24，阿贡国家实验室，2025，https://doi.org/10.2172/2998643. [6] S. Balay, S. Abhyankar, M. F. Adams, S. Benson, J. Brown, P. Brune, K. Buschelman, E. M. Constantinescu L. Dalcin A. Dener V. Eijkhout J. Faibussowitsch W. D. , , , , , , , , , , , , Gropp V. Hapla T. Isaac P. Jolivet D. Karpeev D. Kaushik M. G. Knepley F. Kong S. Kruger D. A. May L. C. McInnes R. T. Mills L. Mitchell T. Munson , , , , , , , J. E. Roman K. Rupp P. Sanan J. Sarich B. F. Smith S. Zampini H. Zhang , , , , , , , H. Zhang and J. Zhang , , *PETSc Web page*。 https://petsc.org/，2025，https://petsc.org/。[7] S. Balay, W. D. Gropp, L. C. McInnes, and B. F. Smith, *Efficient management of parallel-ism in object oriented numerical software libraries*，载于《科学计算中的现代软件工具》，E. Arge、A. M. Bruaset 和 H. P. Langtangen 编，Birkh¨auser Press，1997，第 163–202 页。[8] M. Barzegari and A. Forner-Cuenca, *Topology optimization of porous electrodes for electrochemical flow reactors using the finite element method and triply periodic minimal surfaces* 512 2025 161815, 10 1016 , 化学工程学报, ( ), p. https://doi.org/ . /j.cej. 2025.161815.[9] M. D. R. Batista, S. Chandrasekaran, B. D. Moran, M. S. de Troya, A. Pinongcos,Z. Wang R. Hensleigh A. Carleton M. Zeng T. Roy et al. , , , , , , *Design and additivemanufacturing of optimized electrodes for energy storage applications*, Carbon, 205 (2023), pp. 262–269, https://doi.org/10.1016/j.carbon.2023.01.044. [10] T. Bond, S. Gasilov, R. Dressler, R. Petibon, S. Hy, and J. Dahn, *Operando 3D imagingof electrolyte motion in cylindrical Li-ion cells*, Journal of The Electrochemical Society, 172 (2025), p. 030512, https://doi.org/10.1149/1945-7111/adba8f. [11] A. Brandt, *Multi-level adaptive solutions to boundary-value problems*, Mathematics of Com- putation, 31 (1977), pp. 333–390, https://doi.org/10.1090/s0025-5718-1977-0431719-x. [12] F. Brosa Planella, W. Ai, A. M. Boyce, A. Ghosh, I. Korotkin, S. Sahu, V. Sulzer, R. Timms T. G. Tranter M. Zyskin et al. *A continuum of physics-based lithium-ion* , , , , *battery models reviewed* 4 2022 042003, 10 1088 , Progress in Energy, ( ), p. https://doi.org/ . / 2516-1083/ac7d31. [13] V. D. Bruggeman, *Berechnung verschiedener physikalischer konstanten von heterogenen substanzen. i. dielektrizitätskonstanten und leitfähigkeiten der mischkörper aus isotropen substanzen* 416 1935 636 664, 10 1002 , Annalen der physik, ( ), pp. – https://doi.org/ . /andp. 19354160705.[14] G. Bucci, Y.-M. Chiang, and W. C. Carter, *Formulation of the coupled electrochemical–mechanical boundary-value problem with applications to transport of multiple charged species* , , Acta Materialia, ( ), pp. – 104 2016 33 51, 10 1016 2015 https://doi.org/ . /j.actamat. . 11.030.[15] COMSOL AB, *COMSOL Multiphysics® v. 6.2*, 瑞典斯德哥尔摩，2023，https://www. comsol.com.[16] M. Croci, M. B. Giles, M. E. Rognes, and P. E. Farrell, *Efficient white noise sampling andcoupling for multilevel Monte Carlo with nonnested meshes*, SIAM/ASA Journal on Un- certainty Quantification, 6 (2018), pp. 1630–1655, https://doi.org/10.1137/18M1175239.

[17] N. R. Cross, H. Li, T. Roy, V. M. Ehlinger, T. Y. Lin, N. W. Brady, S. Chandrasekaran, M. A. Worsley and G. Bucci *Viability of additively manufactured electrodes for lithium-ion batteries* 3 2024 214 224, , , , ACS Applied Engineering Materials, ( ), pp. – https://doi.org/ 10.1021/acsaenm.4c00717. [18] T. Danner, M. Singh, S. Hein, J. Kaiser, H. Hahn, and A. Latz, *Thick electrodes for li-ion batteries: A model based analysis* 334 2016 191 201, , Journal of Power Sources, ( ), pp. – https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2016.09.143. [19] Dassault Systèmes Simulia Corp., *Abaqus Analysis User's Guide, version 2024*, 美国罗得岛州普罗维登斯, 2024年。[20] P. Di Prima, D. Dessantis, D. Versaci, J. Amici, S. Bodoardo, and M. Santarelli, *Understanding calendar aging degradation in cylindrical lithium-ion cell: A novel pseudo-4-dimensional electrochemical-thermal model* 377 2025 124640, , Applied Energy, ( ), p. https: //doi.org/10.1016/j.apenergy.2024.124640. [21] V. Dobrev, P. Knupp, T. Kolev, K. Mittal, and V. Tomov, *The target-matrix optimiza-tion paradigm for high-order meshes*, SIAM Journal on Scientific Computing, 41 (2019), pp. B50–B68, https://doi.org/10.1137/18M1167206. [22] M. Doyle, T. F. Fuller, and J. Newman, *Modeling of galvanostatic charge and dischargeof the lithium/polymer/insertion cell*, Journal of The Electrochemical Society, 140 (1993), pp. 1526–1533, https://doi.org/10.1149/1.2221597. [23] T. Duswald, B. Keith, P. Lazarov, S. Petrides, and B. Wohlmuth, *Finite elements for Matern-type random fields: Uncertainty in computational mechanics and design optimiza-tion* 429 2024 117146, , Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, ( ), p. https://doi.org/10.1016/j.cma.2024.117146. [24] R. Fang, M. Kronbichler, M. Wurzer, and W. A. Wall, *Parallel, physics-oriented, mono-lithic solvers for three-dimensional, coupled finite element models of lithium-ion cells*, Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, 350 (2019), pp. 803–835, https://doi.org/10.1016/j.cma.2019.03.017. [25] T. F. Fuller, M. Doyle, and J. Newman, *Simulation and optimization of the dual lithium ion insertion cell* 141 1994 , , , Journal of the electrochemical society, ( ), p. 1, https://doi.org/ 10.1149/1.2054684. [26] D. J. Gardner, D. R. Reynolds, C. S. Woodward, and C. J. Balos, *Enabling new flex-ibility in the SUNDIALS suite of nonlinear and differential/algebraic equation solvers*, ACM Transactions on Mathematical Software (TOMS), (2022), https://doi.org/10.1145/ 3539801.[27] H. Gunnarsson, *Architectured materials for structural battery: Tailored porosity with triplyperiodic minimal surfaces*, 硕士论文, Chalmers University of Technology, 瑞典哥德堡, 2023年。[28] Y. Hahn, Z. Gao, T.-T. Nguyen, and V. Oancea, *A reduced order model for a lithium-ion3D pouch battery for coupled thermal-electrochemical analysis*, Journal of Energy Storage, 70 (2023), p. 107966, https://doi.org/10.1016/j.est.2023.107966. [29] D. A. Ham, P. H. J. Kelly, L. Mitchell, C. J. Cotter, R. C. Kirby, K. Sagiyama, N. Bouziani S. Vorderwuelbecke T. J. Gregory J. Betteridge D. R. Shapero , , , , , R. W. Nixon-Hill C. J. Ward P. E. Farrell P. D. Brubeck I. Marsden T. H. Gib- , , , , , , , , , , , , son M. Homolya T. Sun A. T. T. McRae F. Luporini A. Gregory M. Lange S. W. , , , , , 帝国理工学院、牛津 Funke F. Rathgeber G.-T. Bercea and G. R. Markall *Firedrake User Manual* 大学、贝勒大学和华盛顿大学, 第一版, 2023年5月, https://doi.org/10.25561/104839. [30] V. E. Henson and U. M. Yang, *BoomerAMG: A parallel algebraic multigrid solver and preconditioner* 41 2002 155 177, , , , Appl. Numer. Math., ( ), p. – https://doi.org/ . / S0168-9274(01)00115-5. [31] A. C. Hindmarsh, P. N. Brown, K. E. Grant, S. L. Lee, R. Serban, D. E. Shumaker, and C. S. Woodward *SUNDIALS: Suite of nonlinear and differential/algebraic equation solvers* 31 2005 363 , , , , ACM Transactions on Mathematical Software (TOMS), ( ), pp. –396, https://doi.org/10.1145/1089014.1089020. [32] T. Hutzenlaub, S. Thiele, N. Paust, R. Spotnitz, R. Zengerle, and C. Walchshofer, *Three-dimensional electrochemical Li-ion battery modelling featuring a focused ion-beam/scanning electron microscopy based three-phase reconstruction of a $LiCoO_2$ cathode*, Electrochimica Acta, 115 (2014), pp. 131–139, https://doi.org/10.1016/j.electacta.2013.10. 103.[33] S. Jung and D. Kang, *Multi-dimensional modeling of large-scale lithium-ion batteries*, Journal of Power Sources, 248 (2014), pp. 498–509, https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2013.09. 103.

[34] R. Kantharaj and A. M. Marconnet, *Heat generation and thermal transport in lithium-ion batteries: a scale-bridging perspective*, Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering, 23 (2019), pp. 128–156, https://doi.org/10.1080/15567265.2019.1572679. [35] S. Kulathu, J. A. Hurtado, K. Bose, Y. Hahn, P. A. Bouzinov, R. L. Taylor, and V. Oancea *A three-dimensional thermal-electrochemical-mechanical-porous flow multi-* , *scale formulation for battery cells*, International Journal for Numerical Methods in Engineering, 125 (2024), p. e7464, https://doi.org/10.1002/nme.7464. [36] B. S. Lazarov and O. Sigmund, *Filters in topology optimization based on Helmholtz-typedifferential equations*, International Journal for Numerical Methods in Engineering, 86 (2011), pp. 765–781, https://doi.org/10.1002/nme.3072. [37] H. Li, G. Bucci N. W. Brady N. R. Cross V. M. Ehlinger T. Y. Lin M. Salazar de , , , , , , , , , Troya D. Tortorelli M. A. Worsley and T. Roy *Topology optimization forthe full-cell design of porous electrodes in electrochemical energy storage devices*, Structural and Multidisciplinary Optimization, 67 (2024), p. 188, https://doi.org/10.1007/ s00158-024-03901-z. [38] J. Lin, H. N. Chu, K. Thu, M. Wojtala, F. Gao, and K. J. Chua, *Novel battery thermal management via scalable dew-point evaporative cooling*, Energy Conversion and Management, 283 (2023), p. 116948, https://doi.org/10.1016/j.enconman.2023.116948. [39] T. Y. Lin, H. Li, N. W. Brady, N. R. Cross, V. M. Ehlinger, T. Roy, D. Tortorelli, C. Orme M. A. Worsley and G. Bucci , , , *Shape matters: understanding the effect ofelectrode geometry on cell resistance and chemo-mechanical stress*, Journal of the Electrochemical Society, 171 (2024), p. 100515, https://doi.org/10.1149/1945-7111/ad81b4. [40] B. Liu, H. Zhao, H. Yu, J. Li, and J. Xu, *Multiphysics computational framework for cylindrical lithium-ion batteries under mechanical abusive loading*, Electrochimica Acta, 256 (2017), pp. 172–184, https://doi.org/10.1016/j.electacta.2017.10.045. [41] S. G. Marquis, V. Sulzer, R. Timms, C. P. Please, and S. J. Chapman, *An asymptoticderivation of a single particle model with electrolyte*, Journal of The Electrochemical Society, 166 (2019), p. A3693, https://doi.org/10.1149/2.0341915jes. [42] W. Mei, C. Liang, J. Sun, and Q. Wang, *Three-dimensional layered electrochemical-thermalmodel for a lithium-ion pouch cell*, I nternational Journal of Energy Research, 44 (2020), pp. 8919–8935, https://doi.org/10.1002/er.5601. [43] A. Mistry, K. Smith, and P. P. Mukherjee, *Stochasticity at scales leads to lithium intercalation cascade* 12 2020 16359 , ACS Applied Materials & Interfaces, ( ), pp. –16366, https://doi.org/10.1021/acsami.9b23155. [44] S. K. Mitusch, S. W. Funke and J. S. Dokken *dolfin-adjoint 2018.1: automated adjoints for FEniCS and Firedrake* , , , 4 2019 1292, Journal of Open Source Software, ( ), p. https: //doi.org/10.21105/joss.01292. [45] J. Newman, *Numerical solution of coupled, ordinary differential equations*, Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals, 7 (1968), pp. 514–517, https://doi.org/10.1021/ i160027a025.[46] J. Newman, *Dualfoil*. http://www.cchem.berkeley.edu/jsngrp/fortran.html, 1998. [47] M. Parmananda, C. Norris, S. A. Roberts, and P. P. Mukherjee, *Probing the role of multi-scale heterogeneity in graphite electrodes for extreme fast charging*, ACS Applied Materials & Interfaces, 14 (2022), pp. 18335–18352. [48] T. Roy, M. A. Salazar de Troya, M. A. Worsley, and V. A. Beck, *Topology optimiza-tion for the design of porous electrodes*, Structural and Multidisciplinary Optimization, 65 (2022), p. 171, https://doi.org/10.1007/s00158-022-03249-2. [49] J. W. Ruge and K. Stüben, *Algebraic multigrid*, 收录于《多重网格方法》, 《应用数学前沿》第3卷, SIAM, 费城, 1987年, 第4章, 第73–130页, https://doi.org/10.1137/1.9781611971057.ch4. [50] Y. Saad and M. H. Schultz, *GMRES: A generalized minimal residual algorithm for solvingnonsymmetric linear systems*, SIAM Journal on scientific and statistical computing, 7 (1986), pp. 856–869, https://doi.org/10.1137/0907058. [51] K. Sagiyama, L. Mitchell, and D. A. Ham, *An abstraction for solving multi-domain problems using finite element methods* 2512 06146, 2025 10 , arXiv预印本 arXiv: . ( ), https://doi.org/ . 48550/arXiv.2512.06146. [52] A. Samba, N. Omar, H. Gualous, O. Capron, P. Van den Bossche, and J. Van Mierlo,*Impact of tab location on large format lithium-ion pouch cell based on fully coupled three-dimensional electrochemical-thermal modeling* 147 2014 319 , Electrochimica Acta, ( ), pp. – 329, https://doi.org/10.1016/j.electacta.2014.08.115. [53] M. R. Schmidt, J. L. Barrera, K. Mittal, K. E. Swartz, and D. A. Tortorelli, *Level-set topology optimization with PDE generated conformal meshes*, Structural and Multidisci-

优化学报，67（2024），第184页，https://doi.org/10.1007/s00158-024-03870-3。[54] V. Sulzer, S. G. Marquis, R. Timms, M. Robinson, and S. J. Chapman, *Python Battery Mathematical Modelling (PyBaMM)* 9 2021 14, ，开放研究软件期刊，（），第 页，https://doi.org/10.5334/jors.309。[55] H. Sundqvist and G. Veronis, *A simple finite-difference grid with non-constant intervals*，Tellus，22（1970），第26–31页，https://doi.org/10.3402/tellusa.v22i1.10155。[56] J. Thibart, S. Bergeron, and H. W. Bonin, *On finite-difference solutions of the heat equation in spherical coordinates* 12 1987 457 474, ，数值传热，（），第–页 https: //doi.org/10.1080/10407788708913597。[57] T. Waldmann, R.-G. Scurtu, D. Brändle, and M. Wohlfahrt-Mehrens, *Effects of tab design in 21700 Li-ion cells: improvements of cell impedance rate capability and cycling aging* 11 2023 2200583, 10 1002 202200583 ，，，能源技术，（），第页，https://doi.org/ . /ente. .。[58] Z. Wang, H. Li, D. Hawthorne, Z. Mao, D. Hahn, N. R. Cross, G. Bucci, T. Roy,M. A. Worsley and X. (Rayne) Zheng *Ultra-thick three-dimensional interpenetrating graphene electrode architectures for high volumetric density energy storage*，材料视界，（2026），第–页，https://doi.org/10.1039/D5MH01991E。[59] A. J. Wathen, *Preconditioning*，数值学报，24（2015），第329–376页，https://doi.org/10. 1017/S0962492915000021。[60] P. J. Weddle, T. Li, D. B. Sulas-Kern, R. J. Tancin, N. Dunlap, B. J. T. de Villers, K. M. Wiaderek A. M. Colclasure and D. P. Finegan ，，，*Depth-resolved lithiated gra-dients in pristine and laser-ablated anodes during fast charging*，Journal of The Electrochemical Society，172（2025），第090515页，https://doi.org/10.1149/1945-7111/ae01e0。[61] F. Wiesner, A. Limper, C. Marth, A. Brodersen, M. Wessling, and J. Linkhorst, *Additive manufacturing of intertwined electrode pairs-guided mass transport with gyroids*，先进工程材料，25（2023），第2200986页，https://doi.org/10.1002/adem.202200986。[62] J. Wu, V. Srinivasan, J. Xu, and C. Wang, *Newton-Krylov-multigrid algorithms for battery simulation* 149 2002 1342, ，Journal of the electrochemical society，（），第A 页，https://doi.org/ 10.1149/1.1505635。[63] S. Xu and L. Cao, *Optimal convergence in finite element semidiscrete error analysis of the Doyle–Fuller–Newman model beyond one dimension with a novel projection operator* ，IMA数值分析期刊，（2025），第draf065页，https://doi.org/10.1093/imanum/ draf065。[64] X. Xue, S. Chandrasekaran, C. Zhu, M. A. Worsley, and Y. Li, *Architecting the third dimension of electrochemical energy storage* 2026 ，ACS能源快报，（），https://doi.org/ 10.1021/acsenergylett.5c03653。[65] X. Xue, L. Feng, Q. Ren, C. Tran, S. Eisenberg, A. Pinongcos, L. Valdovinos, C. Hsieh, T. W. Heo M. A. Worsley C. Zhu and Y. Li ，，，，，*Interpenetrated structures for enhancingion diffusion kinetics in electrochemical energy storage devices*，纳微快报，16（2024），第255页。[66] B. Yan, C. Lim, L. Yin, and L. Zhu, *Three dimensional simulation of galvanostatic dischargeof $LiCoO_2$ cathode based on X-ray nano-CT images*，Journal of The Electrochemical Society，159（2012），第A1604页，https://doi.org/10.1149/2.024210jes。[67] F. Zhang, M. Wei, V. V. Viswanathan, B. Swart, Y. Shao, G. Wu, and C. Zhou, *3D printing technologies for electrochemical energy storage* 40 2017 418 ，纳米能源，（），第–431页，https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2017.08.037。