储能XXXX

基于离散元法的锂电池极片热辊压颗粒重排与力链演化研究

王 磊[1,2]，闫华军[1,2]，冯拓然[1,2]，邵海涛[3]，杨 光[1,2]，冯鹏妮[1,2]，常宏杰[1,2]，张长军[4]，刘计春[5]

（[1]河北科技大学机械工程学院，河北 石家庄 050018；[2]河北省增材制造产业技术研究院，河北 石家庄 050018；[3]宁波大学先进储能技术与装备研究院，浙江 宁波 315000；[4]河北机电职业技术学院，河北 邢台 054000；[5]邢台朝阳机械制造有限公司，河北 邢台 054000）

摘 要：辊压是锂离子电池极片制造过程中的关键工序，其压实行为直接影响电极孔隙结构、颗粒接触状态及界面稳定性。传统冷辊压过程中，碳胶相(Carbon-Binder Domain,CBD)对活性颗粒的约束较强，易导致涂层内部载荷传递不均、局部应力集中、活性颗粒破碎及集流体损伤。针对上述问题，本文基于离散元法（Discrete Element Method，DEM）建立锂离子电池镍钴锰(Nickel Cobalt Manganese，NCM)正极片热辊压微观力学模型，采用爱丁堡弹塑性黏附模型(Edinburgh Elastoplastic Adhesion，EEPA)描述活性颗粒接触行为，并结合动态热机械分析实验(Dynamic Mechanical Analysis，DMA)结果构建随温度变化的CBD Bond模型参数。通过设置25℃、60℃和90℃三个辊压温度，在30%压下量条件下系统分析颗粒位移重排、力链网络演化、颗粒名义应力分布及颗粒—集流体界面接触行为。结果表明，升高辊压温度可显著软化PVDF/CBD网络，降低NCM颗粒间的滑移阻力，促进颗粒发生侧向滑移、旋转与重排，使厚度方向位移梯度趋于均匀。90℃热辊压有效抑制了粗大强力链的形成，降低了高应力颗粒比例，并使颗粒—集流体界面接触由局部集中侵入转变为较均匀接触。研究表明，热辊压可通过软化PVDF/CBD网络降低颗粒间运动阻力，促进NCM颗粒在压实过程中的滑移与重排，使涂层内部载荷传递更加均匀，进而缓解局部应力集中并降低颗粒破碎和集流体损伤风险，为锂离子电池极片热辊压工艺优化提供了理论依据。

关键词：锂电池极片；热辊压；离散元法；碳胶相；力链

doi：10.19799/j.cnki.2095-4239.2026.0518

中图分类号：TM 912　　文献标志码：A　　文章编号：2095-4239（XXXX）XX-1-09

DEM-Based Investigation on Particle Rearrangement and Force Chain Evolution during Heated Calendering of Lithium-Ion Battery Electrodes

WANG Lei[1,2], YAN Huajun[1,2], FENG Tuoran[1,2], SHAO Haitao[3], YANG Guang[1,2], FENG Pengni[1,2], CHANG Hongjie[1,2], ZHANG Changjun[4], LIU Jichun[5]

([1]School of Mechanical Engineering Hebei University of Science and Technology, Shijiazhuang 050018, Hebei, China; [2]Hebei Province Additive Manufacturing Industry Technology Research Institute, Shijiazhuang 050018, Hebei, China; [3]Ningbo University Institute of Advanced Energy Storage Technology and Equipment, Ningbo 315000, Zhejiang, China; [4]Hebei Institute of Mechanical and Electrical Technology, Xingtai 054000,

收稿日期：2026-06-16；修改稿日期：2026-08-15。
基金项目：河北省重大科技支撑计划（242Q2201Z）；河北省省级科技计划项目（25347625D）；河北省创新资助项目（CXZZSS2027040）。
第一作者：王磊（2002—），男，硕士研究生（在读），研究方向：电池极片热轧制技术，E-mail：2405501914@qq.com；通信作者：闫华军，副教授，研究方向：特种轧制技术，E-mail：yanhj22@163.com。
引用本文：王磊, 闫华军, 冯拓然, 等. 基于离散元法的锂电池极片热辊压颗粒重排与力链演化研究[J]. 储能科学与技术, XXXX, XX(XX): 1-9.
Citation：WANG Lei, YAN Huajun, FENG Tuoran, et al. DEM-Based Investigation on Particle Rearrangement and Force Chain Evolution during Heated Calendering of Lithium-Ion Battery Electrodes[J]. Energy Storage Science and Technology, XXXX, XX(XX): 1-9.

Hebei, China; [5]Xingtai Zhaoyang Machinery Manufacturing Co.,Ltd, Xingtai 054000, Hebei, China)

Abstract: Calendering is a critical process in the manufacturing of lithium-ion battery electrodes, as the compaction behavior directly determines electrode pore structure, particle contact state, and interface stability. During conventional cold calendering, the carbon binder domain (CBD) exerts strong constraints on active material (AM) particles, which often leads to uneven load transfer within the coating, local stress concentration, fracture of active particles, and damage to the current collector. To address these issues, this paper establishes a micromechanical model for hot calendering of NCM (nickel-cobalt-manganese) cathodes based on the discrete element method (DEM). The Edinburgh elasto-plastic adhesive (EEPA) model is employed to describe the contact behavior between AM particles, and temperature-dependent parameters of the CBD bond model are constructed using dynamic mechanical analysis (DMA) experimental results. Three calendering temperatures (25℃, 60℃, and 90℃) are set, and a reduction ratio of 30 % is applied. The model systematically analyzes particle displacement and rearrangement, evolution of the force chain network, nominal stress distribution on particles, and particle–current collector interfacial contact behavior. The results show that increasing the calendering temperature significantly softens the PVDF/CBD network, reduces sliding resistance between NCM particles, promotes lateral sliding, rotation, and rearrangement of particles, and makes the thickness-direction displacement gradient more uniform. Hot calendering at 90℃ effectively suppresses the formation of coarse and strong force chains, reduces the proportion of particles under high stress, and transforms the particle–current collector contact from locally concentrated indentation to a relatively uniform contact pattern. The study demonstrates that hot calendering can lower inter-particle motion resistance by softening the PVDF/CBD network, facilitate sliding and rearrangement of NCM particles during compaction, and promote more homogeneous load transfer within the coating. Consequently, it alleviates local stress concentration and reduces the risks of particle fracture and current collector damage. These findings provide a theoretical basis for optimizing the hot calendering process of lithium-ion battery electrodes.

Keywords: lithium-ion battery electrodes; hot calendering; discrete element method (DEM); carbon binder domain (CBD); force chain

随着新能源汽车和规模化储能技术的快速发展，锂离子电池在能量密度、功率密度和循环寿命等方面面临更高要求[1]。极片作为电池内部电化学反应和离子、电子传输的核心载体，其孔隙结构、颗粒接触状态以及涂层与集流体之间的界面结合质量，直接决定了电极的传输效率、结构稳定性和服役可靠性[2]。在极片制造过程中，辊压工序通过压实涂层、降低孔隙率和增强颗粒间接触，可有效提高电极的体积能量密度和导电网络连续性[3]。然而，辊压过程并非单纯的致密化过程，过高的压实程度可能使涂层内部载荷传递不均，诱发局部应力集中，进而导致活性颗粒破碎、孔道堵塞、涂层局部脱黏甚至集流体损伤等问题，最终削弱电极的离子传输能力和长期循环稳定性[4]。因此，在提升极片压实密度的同时，如何调控涂层内部颗粒重排与应力传递行为，降低颗粒破碎和界面损伤风险，是锂离子电池极片辊压工艺优化中的关键问题。

聚偏氟乙烯(Polyvinylidene Fluoride,PVDF)是锂离子电池正极中常用的高分子黏结剂，具有典型热塑性特征，其弹性模量和屈服强度会随温度升高而降低[5]。热辊压通过提高轧辊温度，使PVDF及由导电碳黑与黏结剂组成的碳胶相(carbon-binder domain,CBD)发生热软化，从而改变极片涂层在压实过程中的力学响应[6]。已有研究表明[7-8]，升高辊

压温度能够降低电极压实阻力，改善涂层致密化行为，并且CBD的形态和分布会显著影响电极的压实性能及电化学表现。但现有研究多依赖辊压前后厚度、孔隙率和截面形貌等静态表征，难以揭示压实过程中颗粒运动、CBD变形、力链传递及界面接触演化等微观机制。离散元法(Discrete Element Method,DEM)能够从颗粒尺度描述多颗粒体系的接触、滑移、重排和载荷传递行为，近年来已被用于极片辊压过程模拟[9]。相关研究通过DEM或DEM-FEM耦合方法分析了涂层界面载荷、颗粒弹塑性行为、CBD键合断裂以及活性颗粒侵入集流体所导致的损伤机制[10-11]。然而，现有模型多集中于常温压实条件，对温度诱导的CBD软化作用及其对颗粒重排、力链均匀化、颗粒破碎和集流体损伤的影响仍缺乏系统认识。

基于上述问题，本文建立了一种结合实验标定与离散元模拟的热辊压微观力学分析方法，旨在从颗粒尺度揭示锂离子电池正极片热辊压过程中的压实机制。模型采用爱丁堡弹塑性黏附(Edinburgh Elasto-Plastic Adhesion, EEPA)模型描述活性颗粒间的接触行为，并引入随温度变化的黏结模型(Parallel Bond,Bond)模型表征CBD网络的力学响应。通过动态热机械分析(Dynamic Mechanical Analysis, DMA)实验获取25℃、60℃和90℃下CBD储能模量变化，并据此标定不同温度下的键合刚度与强度参数。在30 %固定压下量条件下，系统分析不同温度下极片内部颗粒位移重排、动态力链网络演化、NCM颗粒名义应力分布以及底层颗粒对集流体的法向侵入行为。本文可为理解热辊压过程中碳胶相及活性颗粒之间的微观变形机制提供理论依据，并为锂离子电池极片热辊压工艺优化提供参考。

1　材料与方法

1.1　材料及极片制备

本研究以镍钴锰酸锂$Li[Ni_{0.5}Co_{0.2}Mn_{0.3}O_2]$($NCM_{523}$)作为活性物质，Super P Li作为导电剂，PVDF作为高分子黏结剂。各组分的质量比为NCM:CB:PVDF=90:5:5，以厚度为15 μm的铝箔作为正极集流体。将称量好的NCM_{523}活性颗粒、导电炭黑(Carbon Black, CB)与PVDF黏结剂干粉投入行星真空搅拌机(MSK-SFM-16)中，进行25 min的干粉混合。向混合干粉中分批加入适量的N-甲基吡咯烷酮(N-Methyl-2-pyrrolidone,NMP)作为溶剂，在真空环境下进行充分搅拌，将制备好的浆料均匀地涂覆在铝箔基材上(单面涂覆)。将涂覆好的正极片置于烘箱中，100℃烘干8 h。

1.2　理论模型

本研究采用EEPA接触模型与Bond模型分别描述活性颗粒间及CBD的力学行为[12]。EEPA模型中，法向接触力F_n由滞回弹性力F_{hys}与法向阻尼力F_{nd}叠加而成，为公式(1)

$$F_n = \left(F_{hys} + F_{nd}\right)u \tag{1}$$

u是从接触点到粒子中心的单位法向量,F_{hys}的力−位移关系为公式(2)：

$$F_{hys} = \begin{cases} f_0 + k_1\delta^n & \text{if} \quad k_2\left(\delta^n - \delta_p^n\right) \geq k_1\delta^n \\ f_0 + k_2\left(\delta^n - \delta_p^n\right) & \text{if} \quad k_1\delta^n > k_2\left(\delta^n - \delta_p^n\right) > -k_{adh}\delta^n \\ f_0 - k_{adh}\delta^n & \text{if} \quad -k_{adh}\delta^n \geq k_2\left(\delta^n - \delta_p^n\right) \end{cases} \tag{2}$$

f_0为恒定粘附力，δ为总法向重叠量，δ_p^n为塑性重叠量。k_1为加载刚度，k_2为卸载刚度，k_{adh}为黏结刚度，n=1.5。加载刚度$k_1 = \frac{4}{3}\sqrt{R^*}E^*$，$R^*$、$E^*$为等效半径与等效杨氏模量。接触塑性比定义为公式(3)：

$$\lambda_p = 1 - \frac{k_1}{k_2} \tag{3}$$

法向阻尼力$f_{nd} = -\beta_n v_n$，阻尼系数$\beta_n = \sqrt{4m^*k_1/\left[1 + (\pi/\ln e)^2\right]}$，$e$为恢复系数。Bond模型中，法向与切向力增量及力矩增量分别为公式(4)(5)：

$$\Delta F_{n,b} = -k_{n,b}A_b v_{n,b}\Delta t, \Delta M_{n,b} = -k_{n,b}A_b\omega_{n,b}\Delta t J_b \tag{4}$$

$$\Delta F_{t,b} = -k_{t,b}A_b v_{t,b}\Delta t, \Delta M_{t,b} = -k_{t,b}A_b\omega_{t,b}\Delta t J_b \tag{5}$$

其中$k_{n,b}$、$k_{t,b}$为单位面积法向与切向刚度，A_b、J_b为键的截面积与极惯性矩，v、ω为相对速度与角速度分量。键的断裂依据最大应力准则为公式(6)：

$$\sigma_{n,b} = \frac{\left|F_{n,b}\right|}{A_b} + \frac{\left|M_{t,b}\right|R_b}{I_b} \leqslant \sigma_{n,st}, \sigma_{t,b} = \frac{\left|F_{t,b}\right|}{A_b} + \frac{\left|M_{n,b}\right|R_b}{J_b} \leqslant \sigma_{t,st} \tag{6}$$

1.3　极片颗粒材料建模

采用离散元软件EDEM构建NCM极片的三维代表性体积单元(Representative Volume Element, RVE)模型，计算域尺寸为100 μm × 100 μm × 100 μm，模型如图1所示。涂层颗粒采用动态颗粒

工厂生成，按实际配方引入NCM颗粒，完成颗粒堆积。为降低侧壁效应，在X和Y方向施加周期性边界条件，使颗粒移出计算域后可自相对侧重新进入并继续接触，以表征电极涂层在面内方向的连续延展，Z方向设置物理边界。顶部设刚性压缩板沿Z轴移动，等效模拟轧辊的机械压缩。在此堆积结构上保持周期性边界条件，开展后续辊压仿真。压缩板以0.1 mm/s恒定速度向下运动，底部设为铝材以表征集流体。固定宏观压下量30 %，对比不同温度下的演化规律。NCM颗粒间采用EEPA模型，参数如表1所示。

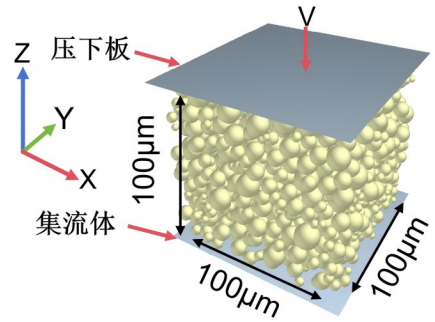


图1 极片涂层微观离散元三维代表性体积单元(RVE)模型及辊压加载边界条件示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the three-dimensional representative volume element (RVE) model and calendering boundary conditions for the electrode coating

表1 EEPA模型参数表[11]

Table 1 EEPA Model Parameter Table [11]

类型	参数	数值
活性物质颗粒	密度, ρ (kg·m^{-3})[13]	4750
	杨氏模量, E (GPa)[14]	142
	泊松比, v[15]	0.25
集流体	密度 (kg·m^{-3})[13]	2700
	杨氏模量 (GPa)[15]	68.9
	泊松比,v[15]	0.33
压下板	密度 (kg·m^{-3})[13]	7800
	杨氏模量(GPa)[14]	182
	泊松比,v[15]	0.3
颗粒-颗粒	静摩擦系数[16]	0.25
	滚动摩擦系数[16]	0.01
	恢复系数,e[16]	0.25
	表面能，AM-AM(J·m^{-2})[16]	8
	表面能，CB-CB(J·m^{-2})[16]	60
	表面能，AM-CB(J·m^{-2})[16]	20
	接触塑性比,λ_p[16]	0.96
	初始恒定附着力,f_0(N)[16]	10^{-5}

1.4 实验方法

为获取NCM颗粒的真实几何特征及粒径分布，分别采用扫描电镜(SEM)和粒度仪对2.1节中制备好的极片和原始粉末样品进行表征。在25℃下，对所制备的未辊压极片的涂层表面进行纳米压痕测试(Nano Indenter II，配备曲率半径小于100 nm的Berkovich三角锥金刚石压头)。基于Oliver-Pharr原理，通过记录压头的载荷-位移曲线，评估极片涂层的接触刚度与弹塑性响应。压头以0.5 mN/s的恒定速率垂直加载至预设的最大法向峰值载荷，保载时间10 s以消除材料的蠕变效应，最后以相同速率卸载至零。获取载荷-位移曲线，多次测量取代表性平均曲线。

将PVDF与CB按质量配比为CB:PVDF=1:1进行CBD的制样。将称量好的CB颗粒与PVDF粉末投入行星真空搅拌机(MSK-SFM-16)中进行干粉预混20 min；加入适量NMP溶剂，调配出均质碳胶相浆料。将浆料均匀刮涂于聚四氟乙烯(PTFE)光滑基板上，真空烘箱中90℃下干燥12 h。将薄膜裁切为30 mm×5 mm的标准条状试样。试样在DMA Q800上进行温度扫描，温度范围20~130℃，频率1 Hz，升温速率3℃/min，记录储能模量E随温度的变化。

2 结果与讨论

2.1 粒径分布及建模

粒径分布如图2(a)所示，NCM颗粒的粒径分布为D_{10}=3.5 μm，D_{50}=7.2 μm，D_{90}=13.8 μm。模型颗粒依据真实观测到的颗粒形状和粒径分布建模，如图2(b)所示。图2(c)为1.1节中制备的未辊压极片Z向扫描电镜图(Scanning Electron Microscope，SEM)，由图可知NCM颗粒在外力堆积下为随机排布状态，颗粒间被微小的CBD网络所缠绕包裹，图(d)对应展示了在离散元软件中等比例生成的Z向初始未辊压电极RVE几何模型Z向切面。

2.2 Bond模型参数推导及纳米压痕验证

温度升高会增加设备的能耗与运营成本，辊面温度均一性难以保证，轧辊的热膨胀热变形会削弱辊缝控制精度，损害极片厚度的一致性,易引发黏结剂在剪切下的流动，使涂层与集流体结合强度下降[7,17]。DMA实验数据如图3(a)，当温度达到90℃

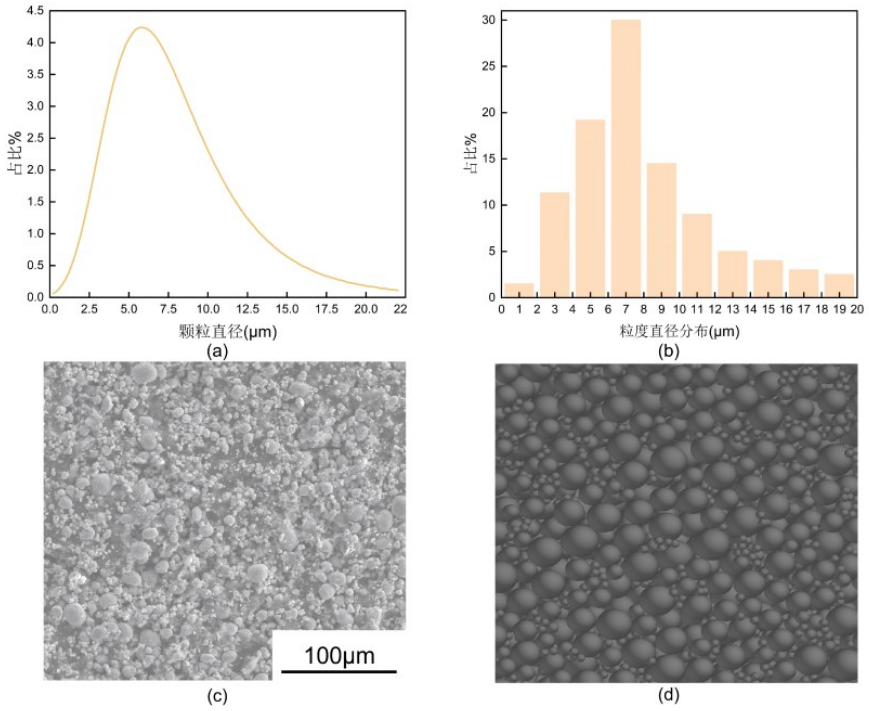


图2　NCM颗粒粒径分布与电极微观形貌的实验-仿真对比：(a) 粒度仪测得的NCM颗粒粒径分布曲线；(b) 离散元模型的颗粒尺寸分布；(c) 真实极片横截面(Z向)扫描电镜(SEM)形貌；(d) 离散元软件中构建的Z向初始电极微观几何模型

Fig. 2　Experimental-simulation comparison of NCM particle size distributions and electrode microstructures: (a) particle size distribution curve of NCM particles measured by a particle size analyzer; (b) reconstructed particle size distribution in the discrete element model; (c) SEM morphology of the real electrode cross-section (Z-direction); (d) initial electrode microscopic geometric model along the Z-direction constructed in the DEM software.

时，CBD的储能模量较常温降低80 %以上，继续升温时，刚度衰减曲线趋于平缓，因此，将仿真温度上限设为90℃。本研究于离散元模拟中设定了25℃、60℃和90℃三个辊压温度[5]。Bond模型中的法向/切向刚度与DMA测得的储能模量E成正比关系[15]。根据25℃、60℃、90℃下的E值，对模型中的键刚度按比例进行缩放,Bond模型参数根据1.2的公式(4)、(5)进行推导得出模型参数如表2所示。

在常温下对未辊压极片进行纳米压痕实验以获取力-位移曲线对模型进行校准，如图3(b)所示。

表2　Bond模型参数表

Table 2　Bond Model Parameter Table

参数	25℃	60℃	90℃
CBD储能模量 E(MPa)	1850	820	265
单位面积法向刚度 k_n(Pa/m)	1.85×10^{13}	8.20×10^{12}	2.65×10^{12}
单位面积切向刚度 k_s(Pa/m)	7.40×10^{12}	3.28×10^{12}	1.06×10^{12}
法向强度σ_c(Pa)	2.00×10^{7}	1.58×10^{7}	1.24×10^{7}
切向强度τ_c(Pa)	1.60×10^{7}	1.26×10^{7}	9.92×10^{6}
黏结盘缩放因子	1	1	1

由于加载时电极内部孔隙的坍塌及活性颗粒的微观位移，实验与模拟数据存在误差，但两曲线高度一致，证明了离散元模型能够准确地表征极片涂层的微观接触力学行为。

2.3　颗粒重排机制的微观位移论证

图4(a-c)展示了25℃、60℃和90℃条件下，极片在30 %压下量时颗粒沿X方向的位移分布。颜色由蓝色到红色分别表示颗粒在X方向上的负向和正向位移，绿色区域则代表颗粒横向位移较小。可以看出，在25℃常温条件下，颗粒位移主要集中在绿色区域，说明涂层内部颗粒的横向运动较弱，压实过程主要表现为沿Z方向的垂直沉降。这主要是由于常温下CBD刚度较高，对NCM颗粒产生较强的黏结和约束作用，使颗粒难以发生明显的侧向滑移与重排。当温度升高至60℃时，图中黄色、红色和蓝色位移点明显增多，表明颗粒在压缩过程中开始产生更显著的横向移动。进一步升高至90℃后，X方向正负位移分布更加广泛，颗粒横向滑移程度进一步增强。这说明高温条件下PVDF/

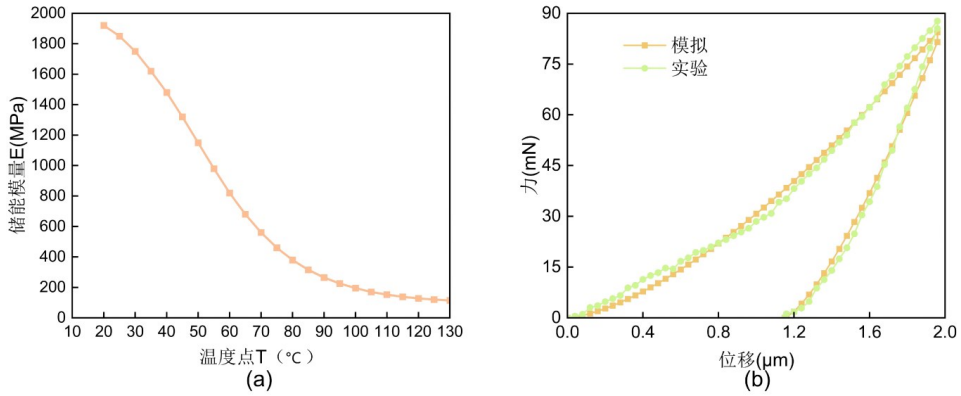


图3 碳胶相的热机械性能与离散元模型的力学校准：(a) 碳胶相储能模量随温度变化的DMA实验曲线；(b) 常温条件下极片涂层纳米压痕实验与仿真的力-位移曲线

Fig. 3 Thermomechanical properties of the carbon-binder domain (CBD) and mechanical calibration of the discrete element model: (a) experimental DMA curves of CBD storage modulus as a function of temperature; (b) force-displacement curves of the electrode coating from nanoindentation experiments and simulations at room temperature.

CBD网络发生热软化，颗粒间的运动阻力降低，使NCM颗粒能够通过滑移、旋转和重新排列来释放局部压缩应力。图4(d)为30 %压下量时颗粒沿Z向的平均位移分布曲线，涂层等分20层并归一化，X=0为集流体界面，X=1为涂层表面。三组温度下Z向位移均自表面向集流体递减，因底部集流体固定，X=0处位移趋于0，表层X=1处宏观压缩量相同，最大垂直位移基本一致。但不同温度下位移梯度各异，25 ℃时，表层附近位移梯度随深度增加减缓，下半部分颗粒位移极小，表明在常温下颗粒横向位移受限，垂直向下传递，底层受集流体摩擦与剪切抗力，形成不均匀位移梯度。60 ℃时位移曲线的非线性减弱，中底层曲线向高位移提升；90 ℃时位移梯度呈线性衰减，中底层垂直平均位移提升，曲线局部斜率趋于均一。表明高温下局部压缩应力释放，垂直载荷充分导向集流体一侧，电极压实形变分布均一。

2.4 动态力链网络演化

图5展示了在25℃、60℃、90℃与10 %、20 %、30 %压下量交互作用下，极片涂层内部力链网络的空间分布、动态演化规律以及强力链比例的统计。图5(a)-(i)为不同温度与不同压下量下力链的几何形态。(a)-(c)对应25℃常温条件，(d)-(f)对应60℃条件，(g)-(i)对应90℃条件，自左向右依次代表压下量为10 %、20 %和30 %。力链是颗粒体系中传递载荷的主要路径，力链的粗细与颜色反映了颗粒间接触力的大小，颜色由深蓝过渡至深红分别对应力链强度由1.0 mN到15.0 mN的演化，其分布特征直接决定了局部应力集中程度和压实均匀性。在相同压下量下，25℃常温时，极片内部贯穿了大量粗壮深红色强力链骨架，局部应力集中严重，表明载荷依赖颗粒间的刚性接触来对抗，易引发NCM颗粒破碎。60℃时，同等压下量下的红、黄色强力链减少，网络主干向青、绿色等中等强度力链过渡，表明随着PVDF/CBD网络发生热软化，颗粒间的运动约束被减弱。升温至90℃后，即使30 %压下量下，涂层内部也几乎观察不到粗壮的深红色局部应力骨架，空间中分布着均匀的浅蓝和青色弱力链网络。

温度对局部压缩应力具有释放作用。任意温度下随压下量增大，涂层孔隙被压缩，颗粒接触配位数增加，导致力链网络密度提升。黄色和红色的强力链数量及连通性明显增强，说明外部载荷作用下颗粒间的接触增加或者相互作用增加。图5(j)则给出了不同温度条件下涂层内部强力链比例随压下量的动态演化曲线。在25℃常温条件下，随着压下量的增加，强力链比例表现出极高的增长速率。90℃下力链演化曲线斜率低，增长平缓，在压下量由0 %向20 %增加时，强力链比例稳定在较低水平，这表明随着温度升高NCM颗粒能够通过滑移、旋转和重新排列来释放局部压缩应力延迟了强力链的生成。力链网络的均匀化直接关系到NCM颗粒的完整性。

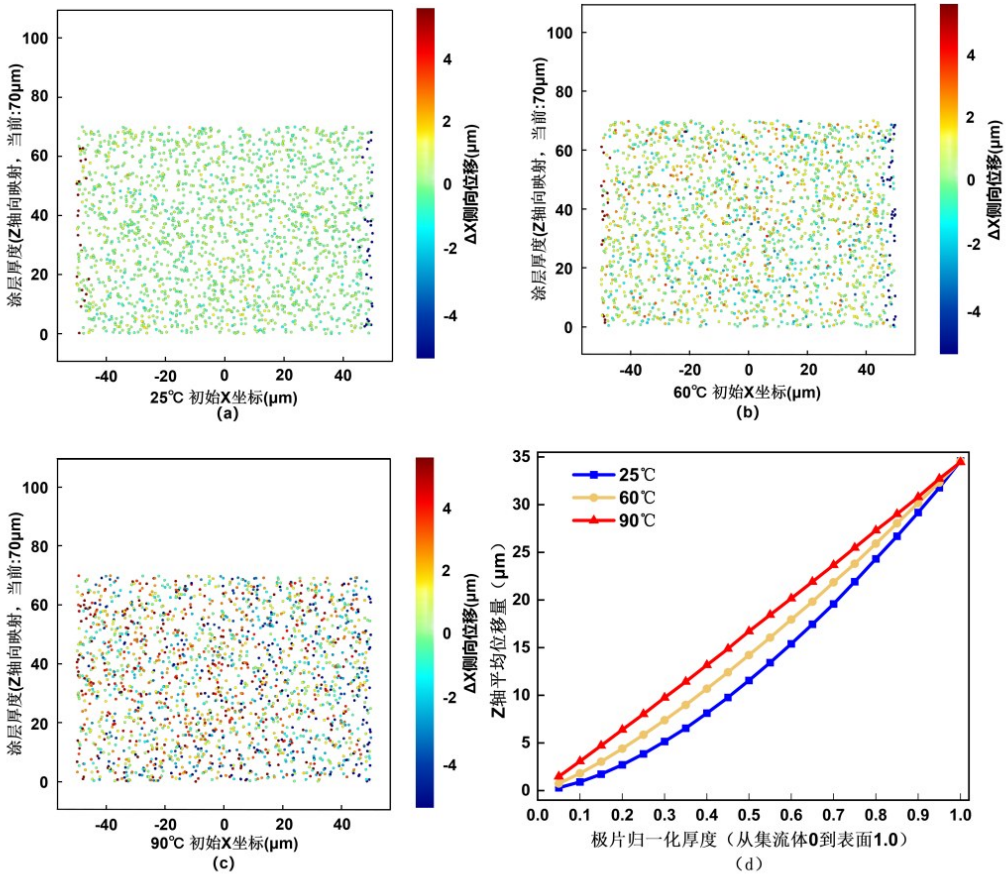


图4　30 %压下量下不同温度工况的颗粒微观位移与梯度演化：(a)-(c) 颗粒沿X方向的位移分布云图；(d) 沿归一化极片厚度的颗粒Z向平均位移曲线

Fig. 4　Evolution of microscopic particle displacement and deformation gradient under 30 % reduction ratio at different temperatures: (a)-(c) contour plots of particle displacement in the X-direction; (d) average particle Z-displacement curves along the normalized electrode thickness.

2.5　温度对颗粒破碎的抑制机制

本文引入单颗粒承受的名义应力$\sigma^m=f_{max}/d^2$评估破碎风险，并将200 MPa定义为破碎名义应力界限[18]。图6(a)为25℃、60℃和90℃下极片30 %压下量时NCM颗粒名义应力的统计概率分布直方图，图6(b)-(d)为对应温度下名义应力超过200 MPa的高危颗粒在涂层内的空间分布。常温下，名义应力分布范围广，峰值位于150~200 MPa高应力区间，19.0 %的颗粒超过200 MPa，处于破碎风险区。温度升至90℃时，峰值移至50~100 MPa低应力区间，高危颗粒比例显著降低，表明PVDF/CBD热软化释放了局部应力，对颗粒起到保护作用。25℃下，如图6b所示高危颗粒在涂层内占比较高，沿纵向形成贯穿涂层的力传导链。60℃时高危颗粒减少，贯穿涂层的力传导链开始发生断裂与离散，90℃时高危颗粒数量显著降低，空间分布呈现孤立、不连续特征，表明热软化诱发的NCM颗粒间的滑移释放了局部应力，显著改善了应力集中。

2.6　温度对界面结合强度的影响

涂层与集流体的界面结合强度是电极循环稳定的关键[7]。本文通过分析集流体表面的颗粒嵌入深度，间接评估界面结合强度。图7为底层颗粒与集流体法向重叠量云图，展示了在30 %压下量下，辊压温度对底层NCM颗粒与集流体法向重叠量分布的影响。图7(a)、(b)和(c)分别对应25℃、60℃和90℃下的辊压仿真。蓝色代表重叠量较小，红色代表重叠量较大，绿色则对应其中间值。重叠量的大小可以反映局部应力的大小，间接反映集流体是否受到损伤。在25℃常温条件下，云图大部分区域呈现代表无明显重叠的蓝色，其中分布着少数深红色且接触面积大的斑点。这说明常温下处于刚性的PVDF/CBD网络限制了颗粒之间的横向重排，

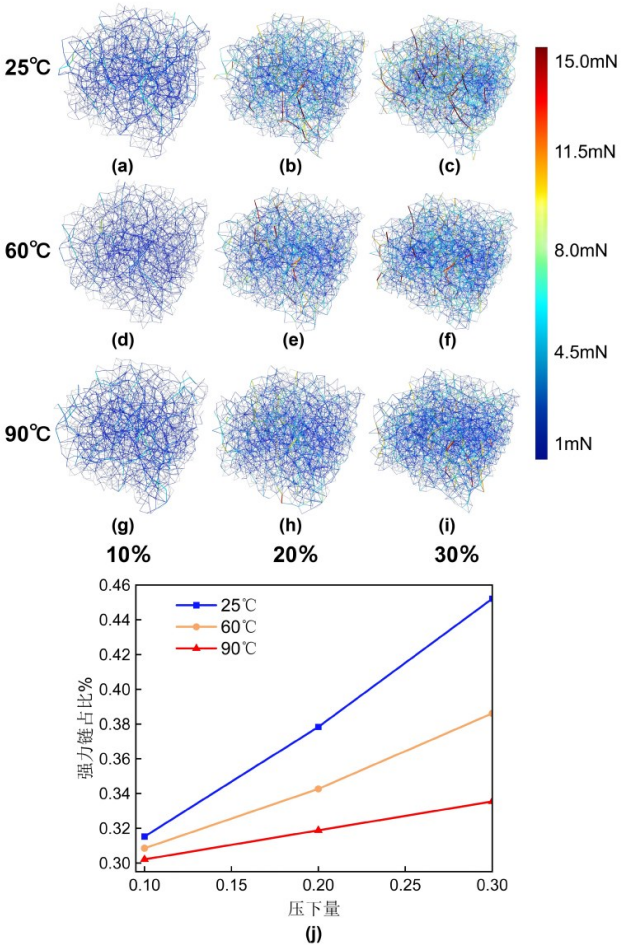
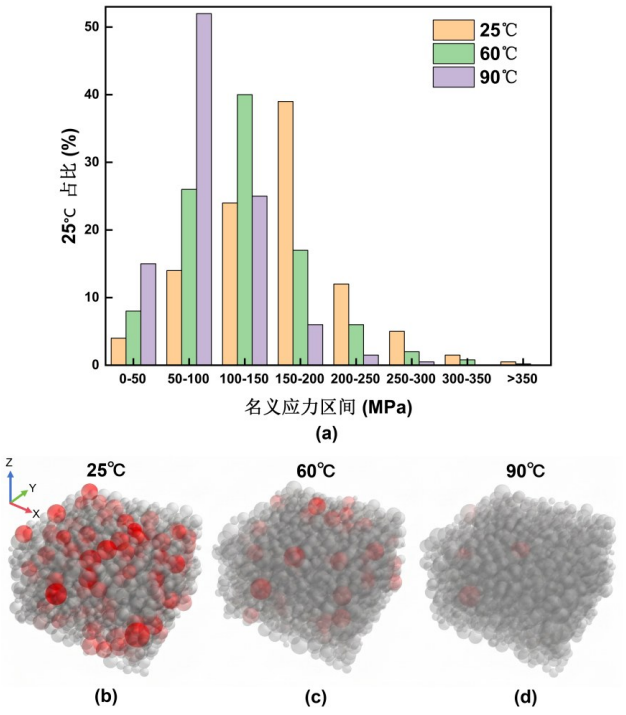


图5 不同辊压温度与压下量交互作用下极片涂层内部力链网络的演化规律：(a)-(c) 25℃；(d)-(f) 60℃；(g)-(i) 90℃ (自左向右压下量依次为10 %、20 %和30 %)；(j) 不同温度下强力链比例随压下量的动态演化曲线

Fig. 5 Spatiotemporal distribution and dynamic evolution of force chain networks within the electrode coating under the interactive effects of calendering temperatures and reductions: (a)-(c) 25℃, (d)-(f) 60℃, and (g)-(i) 90℃ (from left to right, reductions are 10 %, 20 %, and 30 %, respectively); (j) dynamic evolution curves of the strong force chain proportion as a function of reduction at different temperatures.

力只能沿少数颗粒垂直贯穿至集流体表面。这种应力集中可能会导致铝箔集流体局部撕裂或产生微裂纹。当温度升至60℃时，局部的深红色接触点面积减小，颜色变浅，绿色及黄绿色的中等强度接触斑点有所增多，表明界面应力集中得到释放。当温度进一步升高至90℃后，云图大部分代表重叠量适中的绿色，表明涂层颗粒与集流体表面接触更加均匀，集流体产生裂纹风险被大大降低。



注：(a)颗粒名义应力统计直方图；(b-d) 超过200 MPa高危颗粒分别在25℃、60℃和90℃下的空间位置分布

图6 30 %压下量下不同辊压温度的颗粒名义应力分布与高危颗粒空间拓扑演化：

Fig. 6 Distributions of particle nominal stress and spatial topological evolution of high-risk loaded particles under 30% reduction ratio at different temperatures: (a) statistical histograms of particle nominal stress; (b-d) spatial location distributions of high-risk particles exceeding 200 MPa at 25℃, 60℃, and 90℃, respectively.

3 结 论

本文基于离散元法建立了锂离子电池NCM正极片热辊压微观力学模型，采用EEPA模型描述活性颗粒间的弹塑性黏附接触行为，并结合DMA测试结果构建温度相关Bond模型，用于表征PVDF/CBD网络在不同温度下的力学响应。结果表明，升高辊压温度可显著降低CBD网络刚度，减弱其对NCM颗粒的运动约束，促进颗粒在压实过程中的侧向滑移、旋转和重排，使涂层厚度方向的位移梯度更加均匀。与25℃常温辊压相比，90℃热辊压能够抑制粗大强力链的形成，降低强力链比例和高应力颗粒占比，从而缓解局部应力集中并降低活性颗粒破碎风险。同时，高温条件下底层颗粒与集流体之间的法向重叠量分布更加均匀，可避免局部颗粒过度侵入集流体，降低铝箔损伤风险。研究表

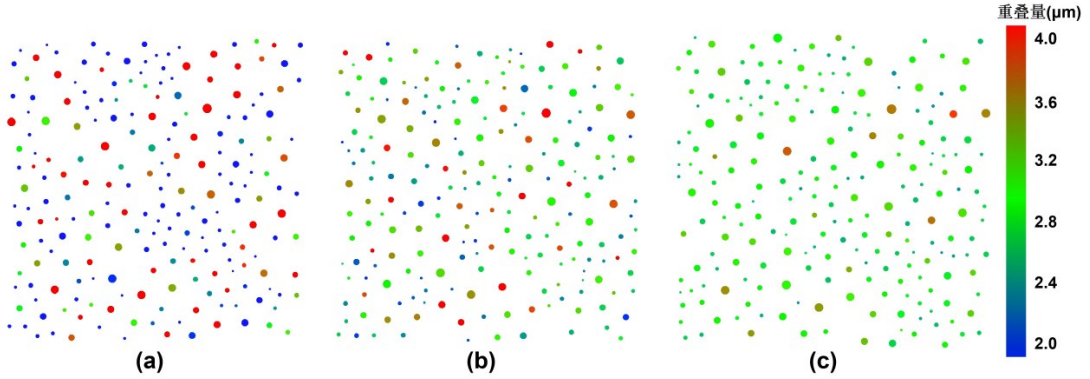


图7　30 %压下量下不同辊压温度的底层颗粒与集流体法向重叠量分布：(a) 25℃；(b) 60℃；(c) 90℃

Fig. 7　Distribution of normal overlap between bottom layer particles and the current collector under different roll-pressing temperatures at 30% compression:(a) 25℃; (b) 60℃; (c) 90℃

明，热辊压可通过调控CBD软化和颗粒重排行为，实现涂层均匀压实与损伤抑制，为极片热辊压工艺优化提供理论依据。

参 考 文 献

[1] Khan F M N U, Rasul M G, Sayem A S M, et al. Maximizing energy density of lithium-ion batteries for electric vehicles: A critical review[J]. Energy Reports, 2023, 9: 11-21..

[2] Wu J, Guo H, Wang R, et al. Fabrication of low-tortuosity thick electrodes with low material loss by temporally shaped ultraviolet femtosecond laser[J]. Nature Communications, 2025, 17: 973.

[3] Wang D, Wang G, Xu C, et al. Mechanics and deformation behavior of lithium-ion battery electrode during calendering process[J]. Journal of Energy Storage, 2024, 87: 111521

[4] Raju K, Price S W T, Merryweather A J, et al. Enhancing power density and cycle life of NMC811 battery cathodes via combined dense calendering and laser patterning[J]. Energy & Environmental Science, 2026, 19(4): 1341-1351.

[5] Castagnet S, Gacougnolle J L, Dang P. Correlation between macroscopical viscoelastic behaviour and micromechanisms in strained α polyvinylidene fluoride (PVDF) [J]. Materials Science and Engineering: A, 2000, 276(1-2): 152-159

[6] Furuhata Y, Takeuchi A, Kishimoto Y, et al. Simple Estimation of Creep Properties of Negative Electrode for Lithium-Ion Battery at High Temperature[J]. MATERIALS TRANSACTIONS, 2026: MT-Z2026005

[7] Meyer C, Weyhe M, Haselrieder W, et al. Heated calendering of cathodes for lithium‐ion batteries with varied carbon black and binder contents[J]. Energy Technology, 2020, 8(2): 1900175.

[8] Primo E N, Chouchane M, Touzin M, et al. Understanding the calendering processability of Li (Ni0. 33Mn0. 33Co0. 33) O2-based cathodes[J]. Journal of power sources, 2021, 488: 229361.

[9] Ge R, Cumming D J, Smith R M. Discrete element method (DEM) analysis of lithium ion battery electrode structures from X-ray tomography-the effect of calendering conditions[J]. Powder Technology, 2022, 403: 117366.

[10] 谢欣兵, 杨凯悦, 杜晓钟 . 锂电池极片辊压过程力学行为与结构[J]. 储能科学与技术, 2024, 13(5): 1699-1706.
Xie X, Yang K, Du X. Mechanical behavior and structure of lithium-ion battery electrode calendering process[J]. Energy Storage Science and Technology, 2024, 05-1699-08

[11] Du H, Zhang Y, Du X, et al. Force chain-induced collector damage in calendering: A DEM-FEM study[J]. Journal of Energy Storage, 2025, 138: 118688.

[12] Sandooghdar S, Chen J, Asachi M, et al. Pore-scale prediction of transport properties in lithium-ion battery cathodes during calendering using DEM and CFD simulations[J]. Powder Technology, 2025, 453: 120601

[13] Giménez C S, Finke B, Schilde C, et al. Numerical simulation of the behavior of lithium-ion battery electrodes during the calendaring process via the discrete element method[J]. Powder Technology, 2019, 349: 1-11

[14] Stershic A J, Simunovic S, Nanda J. Modeling the evolution of lithium-ion particle contact distributions using a fabric tensor approach[J]. Journal of Power Sources, 2015, 297: 540-550

[15] Giménez C S, Finke B, Nowak C, et al. Structural and mechanical characterization of lithium-ion battery electrodes via DEM simulations[J]. Advanced Powder Technology, 2018, 29(10): 2312-2321

[16] Zhang J, Sun J, Huang H, et al. Influence of calendering process on the structural mechanics and heat transfer characteristics of lithium-ion battery electrodes via DEM simulations[J]. Particuology, 2024, 85: 252-267

[17] 吕兆财, 王玉西, 汪智涛, 等 . 热辊压对锂离子电池正极极片性能的影响[J]. 储能科学与技术, 2024, 13(5): 1443-1450.
Lyu Z, Wang Y, WANG Z, et al. Influence of heated calendering process on cathode film performance of lithium-ion batteries[J]. Energy Storage Science and Technology, 2024, 13(5): 1443-1450.

[18] Song Y, Tan L, Gao K, et al. Insights into cathode densification of calendering process by the combination of in-situ CT and DEM [J]. Powder Technology, 2025, 453: 1206