

**Öffentlicher Abschlussbericht zum Förderprojekt
im BMBF Rahmenprogramm „Vom Material zur Innovation“
und im BMBF-Dachkonzept Batterieforschung**

Vorhabenbezeichnung:

MiCha – Mikrostrukturcharakterisierung von Elektroden und Wirkzusammenhänge mit Elektrodenperformance und -alterung

Zuwendungsempfänger:

Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung
Baden-Württemberg (ZSW)

Fachgebiet Elektrochemische Materialentwicklung,
Helmholtzstr. 8, 89081 Ulm

Förderkennzeichen

03XP0317C

Projektleiter

PD Dr. rer. nat. Thomas Waldmann

Berichtszeitraum

01.01.2021 - 30.06.2024

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung



0. Fortlaufende Zusammenfassung

Zielsetzung

Ziele im Projekt MiCha waren Methoden- und Workflowentwicklung (AP2) zur Charakterisierung von Elektrodenmikrostrukturen und die Erforschung von Struktur-Eigenschaftsbeziehungen (AP4) sowie Alterungsmechanismen und die Analyse einer Benchmarkzelle (AP3). Als Benchmarkzelle wurde projektpartnerübergreifend eine kommerzielle 21700-Zelle mit Ni-reichem NMC als Kathode und Si/Graphit als Anode ausgewählt (AP1). Um Synergieeffekte zu schaffen wurde der gleiche Zelltyp auch in den Projekten CharLiSiKo und AnaLiBa (ebenfalls im Aqua-Cluster) genutzt. Die Partner Hochschule Aalen (HSAA), Karlsruher Institut für Technologie (KIT) und das ZSW arbeiteten experimentell, das Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR) simulativ.

Das Teilprojekt am ZSW befasste sich vor allem mit der Entwicklung und Verbesserung von Methoden sowie mit elektrochemischen Untersuchungen der Alterung auf Zellebene und der dafür verantwortlichen Alterungsmechanismen auf Material- und Elektrodenenebene mittels Post-Mortem Analyse, sowie Korrelationen zwischen Mikrostruktur und Performance.

Zusammenfassung der Projektergebnisse

Am ZSW wurden mehrere Methoden entwickelt, weiterentwickelt und validiert.

Es folgende vier Ansätze zur Gasanalyse in Li-Ionenzellen verfolgt. Eine ultraschallbasierende Methode für Pouchzellen wurde weiterentwickelt. Weiterhin wurden Ultraschallsensoren in Zusammenarbeit mit dem Projekt AnaLiBa in ARC-Sicherheitstests implementiert um Pouchzellen während des Thermal Runaways zu untersuchen. Die Ergebnisse wurden in einer projektübergreifenden Zusammenarbeit veröffentlicht [1].

Die Methoden ICP-OES und EDX wurden mit Methoden der Projektpartner abgeglichen und die Ergebnisse der Methoden erwiesen sich als konsistent. Weiterhin wurden Workflows zur Charakterisierung von Zellen und Elektrodenmikrostrukturen entwickelt.

Am ZSW wurde bei Post-Mortem Analysen beobachtet, dass oft einseitige Ablation von Elektrodenbeschichtungen auftreten. Es stellte sich heraus, dass die Unterschiede auf den Beschichtungsseiten auf Unterschiede in der Elektrodenmikrostruktur zurückzuführen sind, die durch konvexes/konkaves Biegen der Elektroden zurückgehen. Um dies weiter zu untersuchen, wurde eine Literaturrecherche zu typischen Elektrodenkrümmungen und Versuche mit modifizierten Rundzellen durchgeführt. Berechnungen zu gekrümmten Elektroden des ZSW zeigten, dass sich die Porosität auf der konvexen und konkaven Beschichtungsseite um bis zu $\pm 2\%$ unterscheiden können. Dies könnte teilweise die Unterschiede in der Alterung auf beiden Seiten von gekrümmten beidseitig beschichteten Elektroden erklären, z.B. in Rundzellen (18650, 21700) oder in Flachwickeln (PHEV1). Mittels von der HSAA erstellten metallographischen Präparaten von gekrümmten Elektroden und anschließender Vermessung

der Elektrodendicke konnte das theoretische Modell zur Elektrodenkrümmung vor allem für die konkav gekrümmte Seite verifiziert werden [2].

Die neu am ZSW entwickelten 3D Arrheniusplots bieten die Möglichkeit, Änderungen in der Alterungsrate während der Alterung darzustellen. Dadurch kann ein verbessertes Verständnis der ablaufenden Alterungsprozesse erzielt werden. Anhand der 3D Arrheniusplots kann insbesondere aufgezeigt werden, wie sich das Minimum der Alterungsrate, also die optimale Alterungstemperatur, im Verlauf der Alterung verschiebt. Durch Anpassung der Betriebsparameter während der Alterung können sich vorteilhaftere Alterungspfade ergeben um die Batteriebensdauer zu verlängern. Diese neuartigen 3D Arrheniusplots konnten weiterhin bei der Untersuchung der Vertauschbarkeit von Alterungsbedingungen angewendet werden. Diese Ergebnisse wurden vom ZSW veröffentlicht [3].

Insgesamt wurden während der Projektlaufzeit 16 Tagungsbeiträge auf Fachtagungen (Vorträge, Poster), 3 Poster und Vorträge auf AQua-Industrietagen und 4 Paper in referierten Fachzeitschriften veröffentlicht (siehe Tabelle 1). Ein Poster mit Projektergebnissen wurde mit einem Posterpreis beim Batterieforum 2024 ausgezeichnet.

1. Aufzählung der wichtigsten wissenschaftlich-technischen Ergebnisse und anderer wesentlicher Ereignisse

Methodenentwicklung Gasanalyse

Am ZSW wurden mehrere Ansätze zur Gasanalyse verfolgt:

1) Offline Gasanalyse von aufgeblähten Pouchzellen

2a) Online Gasanalyse in speziellem Aufbau mit knopfartigen Zellen

2b) Online Gasanalyse mit Pouchzellen

3) Online Gasanalyse während Thermal Runaway (Kooperation mit Projekt AnaLiBa)

Methode (1) eignet sich für aufgeblähte kommerzielle Zellen sowie für Laborzellen, auf die ein Septum aufgeklebt wird durch das die Kapillare zur Gasentnahme eingeführt wird. Es ist die Bestimmung der entsprechenden Gase nach Alterung ex-situ möglich.

Methoden (2a) und (2b) sind für Elektroden geeignet, die in die entsprechenden Zellen verbaut werden. Bei Methode (2b) werden das Septum auf einen speziellen Gassack in der Pouchfolie aufgebracht. Es sind in situ bzw. operando Messungen während der Formierung und ggf. auch während der Alterung möglich.

Bei Methode (3) werden die beim Thermal Runaway im ARC entstehenden Gase die aus der Zelle austreten (operando) gemessen werden. Diese Methode wurde in Zusammenarbeit mit dem Projekt AnaLiBa durchgeführt und auch mit der im Projekt MiCha entwickelten Ultraschallmethode kombiniert (siehe nächster Abschnitt).

Methodenentwicklung Ultraschalltransmission mit Pouchzellen

Am ZSW wurden Alterungs- und Sicherheituntersuchungen mit Ultraschallsensoren durchgeführt indem die die piezokeramischen Elemente direkt auf einer Pouchzelle platziert und zusammen mit weiteren Sensoren in einem Accelerating Rate Calorimeter (ARC) Sicherheitstests unterzogen (Zusammenarbeit mit Projekt AnaLiBa). Die Ergebnisse wurden projektübergreifend veröffentlicht [1].

Methodenabgleich

Die Methoden ICP-OES und EDX (ZSW) wurden mit Methoden der Projektpartner HSAA (EDX, Gefügeanalyse) und KIT (ICP-OES, TGHE) abgeglichen. Es stellte sich heraus, dass die Methoden von ZSW, HSAA und KIT konsistent sind. Weiterhin stellte sich heraus, dass bei der Beschaffung von kommerziellen Zellen auf die Chargenreinheit besonders zu achten ist.

Korrelation Mikrostruktur mit Funktions- und Alterungseigenschaften

Bei Zellöffnungen des ZSW mit verschiedenen kommerziellen Zelltypen wurde gefunden, dass oft Auffälligkeiten im inneren Wickelbereich auftreten. Zum einen treten hier Verformungen auf [4], zum anderen wurde gefunden, dass in diesem Bereich Aktivmaterial bei der Zellöffnung abblättert und zwar präferiert auf einer der beiden Beschichtungsseiten der Elektroden [5]. Es stellte sich heraus, dass die Unterschiede auf den Beschichtungsseiten auf Unterschiede in der Elektrodenmikrostruktur zurückzuführen sind, die durch konvexes/konkaves Biegen der Elektroden zurückgehen.

In verschiedenen Zellformaten kommen unterschiedliche Elektrodenkrümmungen κ vor [5,6]. Die Krümmung entspricht hierbei näherungsweise dem reziproken Wert des Radius r eines tangentialen Kreises ($\kappa = 1/r$). Im Fall von flachen Elektrodenanordnungen (Abbildung 1, links oben) ist $\kappa = 0$ und damit kein Unterschied in der Mikrostruktur der Beschichtungen auf beiden Seiten der Elektroden zu erwarten. Dies ist z.B. in gestackten Pouchzellen oder in den geraden Bereichen von Flachwickeln der Fall [6].

Im Fall von gekrümmten Elektroden, z.B. in den gebogenen Bereichen von Flachwickeln [6] oder in Rundzellen (z.B. 18650 und 21700) [5,6] werden die konkav bzw. konvex gebogenen Elektrodenseiten komprimiert bzw. dekomprimiert (Abbildung 1, links unten). Hieraus ist zu erwarten, dass sich z.B. die Porosität mit der Elektrodenkrümmung ändert. Dies ist konsistent mit Daten von Mussa et al., die über Unterschiede in den Impedanzen von Elektroden aus gekrümmten und nicht gekrümmten Bereichen in Flachwickeln von prismatischen Zellen berichteten [7].

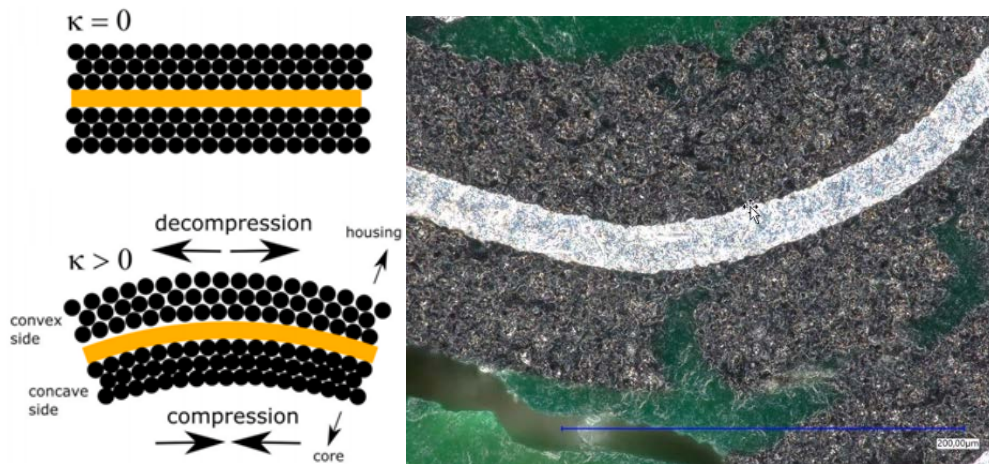


Abbildung 1 links: Erwartete Effekte der Elektrodenkrümmung in Pouch- (links oben) und Rundzellen (links unten). Reproduced from [5] with permission, CC-BY; rechts: Querschnitt einer eingebetteten gebogenen Kathode. Reproduced from [2] with permission, CC-BY.

Abbildung 2 zeigt eine Auswertung des ZSW zum Einfluss der Elektrodenkrümmung auf die Elektrodenmikrostruktur die in Zusammenarbeit mit dem Projektpartner HSAA entstand. In Abbildung 2 (links) ist das elastische Modell (Linien, ZSW) zusammen mit den Datenpunkten (HSAA) für eine Anode abgebildet.

Für die konkave Seite der Anodenbeschichtung zeigte sich eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Modell. Die Dickenänderung der Anode ist auf Partikelausbrüche durch die konkave Krümmung zurückzuführen Abbildung 2 (rechts).

Für die konvexe Seite der Anodenbeschichtung stimmt das Modell nur für kleine Krümmungen mit den Daten überein. Für große Krümmungen (kleine Windungsdurchmesser, $\kappa = 4 \text{ mm}^{-1}$) ändert sich in den Messungen die Beschichtungsdicke nicht signifikant. Die mechanische Spannung führt dagegen zu den Abbildung 2 (rechts) sichtbaren Rissen auf der konvexen Seite der Beschichtung.

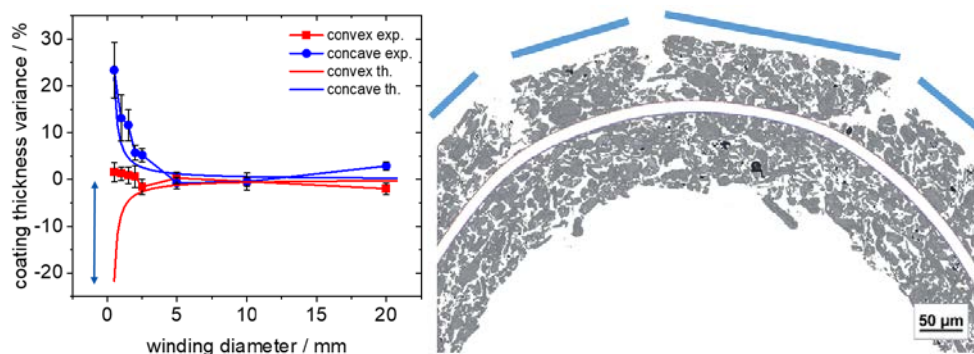


Abbildung 2 Untersuchungen zur Elektrodenkrümmung auf die Mikrostruktur. Links: Elastisches Modell (Linien) und Datenpunkte für die konvexe und konkave Seite der Beschichtung einer Anode (ZSW). Rechts: Metallographische Präparation (HSAA) einer Anode. Die Anode wurden am ZSW hergestellt. Reproduced from [2] with permission, CC-BY.

Ähnliche Untersuchungen wurden auch für Kathoden gemacht (Abbildung 3d-f). Die Ergebnisse sind ähnlich wie für die Anoden, jedoch treten keine Risse auf der konvexen Seite auf. Weitere Versuchsreihen zeigten auch, dass für geringere Krümmungen der Anode ($\kappa = 0.8 \text{ mm}^{-1}$ und $\kappa = 0.1 \text{ mm}^{-1}$) keine Risse auftreten (Abbildung 3b,c).

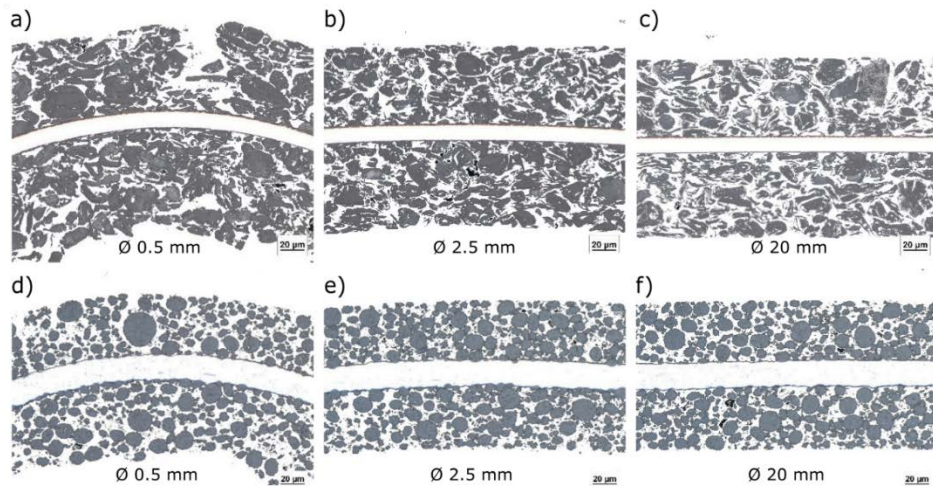


Abbildung 3 Systematische Untersuchung des Einflusses der Elektrodenkrümmung auf die Mikrostruktur. a-c) Anoden, d-f) Kathoden. Reproduced from [2] with permission, CC-BY.

Diese Beobachtungen haben Auswirkungen auf die Bewertung der inneren und äußeren Wicklungen von zylindrischen Zellen. Bei den äußeren Wicklungen zylindrischer (18650, 21700, 48600) oder prismatischer (PHEV1, PHEV2) Zellen oder bei noch größeren Formaten kommt es in der Regel nicht zu inelastischen Verformungen der Elektrodenbeschichtungen. Ähnliches gilt für Elektrodenwindungen (mit noch niedrigeren κ -Werten) nach der Elektrodenherstellung oder für gestapelte Elektroden ($\kappa = 0 \text{ mm}^{-1}$). Inelastische Verformungen können jedoch bei den inneren Wicklungen von Jellyrolls in zylindrischen Zellen oder Zellen mit flach gewickelten Jellyrolls auftreten. Letztlich leiden geknickte Elektroden (sehr hohe κ -Werte) am meisten unter inelastischen Verformungen. Die Wirklichkeit liegt dabei wahrscheinlich zwischen dem elastischen Modell (Porositäts- und Dickenänderung) in Überlagerung mit inelastischen Verformungen.

Abbildung 4 zeigt eine systematisch am ZSW durchgeführte Untersuchung der Elektrodenwiderstände. In diesen Messungen wurden die Elektroden auf eine definierte Krümmung gebracht und für die Messung wieder flach zurückgebogen, da nur so die Messung möglich ist. Aus Abbildung 4 ist ersichtlich, dass sich der Elektrodenwiderstand für den konkaven Fall erhöht, was mit Partikelabrischen aus der Beschichtung zu erklären ist. Dies ist vor allem für die Kathode stärker ausgeprägt.

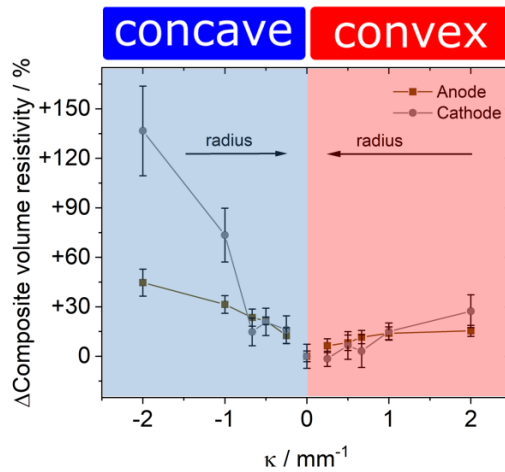


Abbildung 4 Systematische Messungen von Elektrodenwiderständen (ZSW) nach Krümmung um definierte Radien r ($r = \text{curvature } \kappa^{-1}$) und wiederholtem zurückbiegen. Reproduced from [2] with permission, CC-BY.

Für den konvexen Fall (Abbildung 4) sind jedoch weder für Anode noch für Kathode ein starker Anstieg des Elektrodenwiderstand erkennbar, obwohl im Fall der Anode deutliche Risse in der konvexen Beschichtung erkennbar sind. Dies ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, dass die Oberflächen der Risse beim Zurückbiegen wieder ausreichen Kontakt aufweisen um den Widerstand nicht stark zu beeinflussen. Dies ist wahrscheinlich in noch geschlossenen Zellen ähnlich, falls die Alterung zu Rissen in den Anoden geführt hat. Solche Risse können z.B. durch die fortwährende Ausdehnung und Kontraktion der Elektrodenmaterialien beim Laden, insbesondere Graphite (<10%) [8] und Si (<300%) [9] hervorgerufen werden (siehe Abschnitt über Post-Mortem Analyse).

Die Ergebnisse wurden gemeinsam vom ZSW und der HSA veröffentlicht [2].

Änderung der Alterungsrate während der Alterung

Während der Alterung nimmt die Zellkapazität ab [10–16], was durch den State-of-Health (SOH) charakterisiert werden kann. Die Geschwindigkeit dieser Abnahme kann durch die Alterungsrate

$$r = \frac{dSOH}{dt} \quad (1)$$

charakterisiert werden. Die Temperaturabhängigkeit der Alterung wurde in unseren vorherigen Arbeiten durch Arrheniusplots [1,10,17–19] gemäß

$$r = Ae^{-\frac{E_a}{k_B T}} \quad (2)$$

wiedergegeben. Hierbei wurde von uns im vorhergehenden Projekt ReLiOn (BMBF) zu ersten Mal eine V-Form im Arrheniusplot gefunden, die dem Übergang von Li-Plating bei tiefen T zu SEI-Wachstum bei hohen T beschreibt [17]. Beim Übergang der beiden

Hauptalterungsmechanismen ergibt sich ein Minimum für r , das der maximalen Lebensdauer entspricht.

Abbildung 5 (links) zeigt die Abnahme des SOH vom im Projekt bei unterschiedlichen Umgebungstemperaturen T gealterten Pouchzellen. Die gestrichelten Linien sind lineare Fits zur Ermittlung von $r(T)$ nach Gleichung (1). Die r -Werte können gemäß Gleichung (2) wie in Abbildung 5 (Mitte) in einem Arrheniusplot dargestellt werden. Um zusätzlich die zeitliche Veränderung zu berücksichtigen wurden im Projekt 3D-Arrheniusplots entwickelt (Abbildung 5 (rechts)). Die Farbe beschreibt hierbei $\ln(r)$, die x-Achse die Temperatur und die y-Achse den Verlauf der Alterung über den SOH. Das Minimum von $\ln(r)$ (Abbildung 5 (Mitte)), das der minimalen Alterung entspricht verschiebt sich leicht im Verlauf der Alterung, wie im 3D-Arrheniusplot zu sehen ist (Abbildung 5 (rechts)).

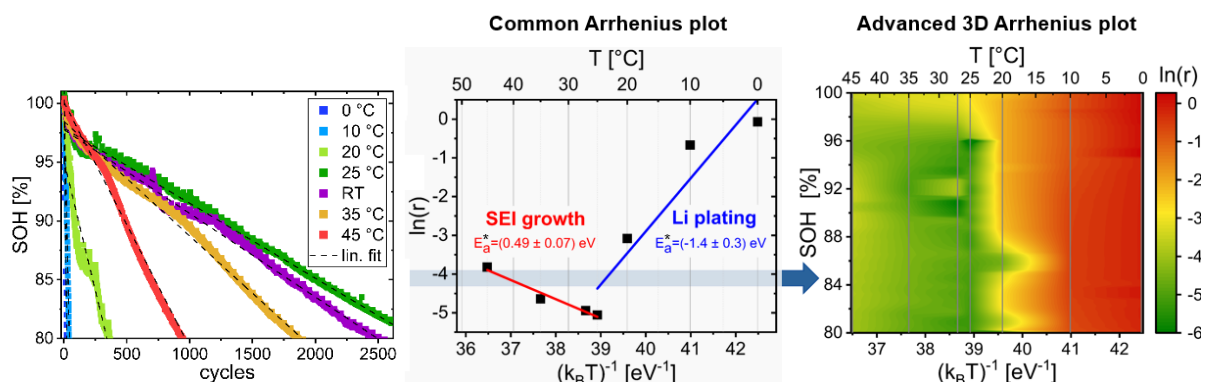


Abbildung 5 Änderung der Alterungsrate r im Verlauf der Alterung. Links: SOH-Abnahme während Zyklisierung. Mitte: Herkömmlicher, bisher verwendeter Arrheniusplot. Rechts: Neuartiger, im Projekt entwickelter 3D-Arrheniusplot. Reproduced from [3] with permission, CC-BY.

3D-Arrheniusplots werden in Zukunft neue Einsichten in die Alterung geben und haben das Potential die Lebensdauer zu erweitern. Beispielsweise können sich durch Anpassung der Betriebsparameter während der Alterung vorteilhaftere Alterungspfade ergeben um die Batteriebensdauer zu verlängern. Dieses Verfahren wurde vom ZSW veröffentlicht [3].

Vertauschbarkeit von Temperaturänderungen auf das Alterungsergebnis

Weiterhin wurde am ZSW ein neues Verfahren entwickelt, um die Änderung von Alterungsbedingungen zu untersuchen. Abbildung 6 (links) zeigt schematisch die Möglichkeit der Vertauschbarkeit bzw. Nicht-Vertauschbarkeit von Alterungsbedingungen auf. Vertauschbarkeit liegt dann vor, wenn unterschiedliche Alterungspfade zum gleichen Ergebnis (SOH) führen. Vertauschbarkeit wurde beispielsweise von Su et al. für kalendarische Alterung gefunden [20]. Abbildung 6 (rechts) zeigt einen Testplan für eine schematische Untersuchung dieses Sachverhalts im Projekt. Hierfür wurden am ZSW Pouchzellen zuerst bei einer Temperatur T_1 gealtert und anschließend bei T_2 weitergealtert.

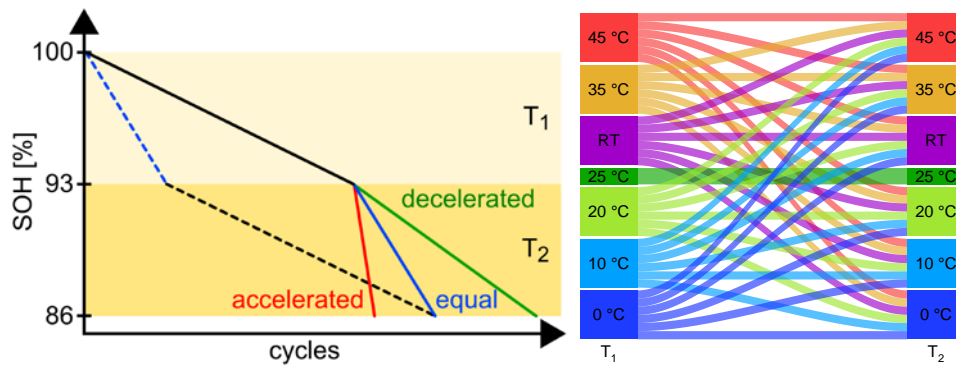


Abbildung 6 Vertauschbarkeit von Alterungsbedingungen. Links: Schematische Darstellung von Vertauschbarkeit und Nicht-Vertauschbarkeit von Alterungsbedingungen. Rechts: Versuchsplan zur Temperaturänderung. Reproduced from [3] with permission, CC-BY.

Abbildung 7 (links) zeigt die insgesamt erzielten Zyklen für unterschiedliche Kombinationen der Alterungstemperaturen T_1 und T_2 . Die maximale zyklische Lebensdauer von 1885 Zyklen ergibt sich für die untersuchten Zellen bei $T_1 = 27 \text{ °C}$ und $T_2 = 20 \text{ °C}$. Im Gegensatz hierzu ergab sich z.B. für $T_1 = T_2 = 27 \text{ °C}$ eine leicht geringere Zyklenanzahl von 1668 und für $T_1 = T_2 = 20 \text{ °C}$ sogar nur 172. Durch Änderung der Temperatur konnte also eine Verlängerung der Lebensdauer um einen Faktor 1.1 bzw. 10.9 erreicht werden. In Abbildung 7 (Mitte) sieht man einen Arrheniusplot, der die Verschiebung des Minimums zu niedrigeren Temperaturen zeigt.

Die Vertauschbarkeit wurde mit dem Kommutator für die Alterungsraten bei zwei Temperaturen a und b in den Bereichen 1 und 2 über

$$[r_a, r_b] = (r_{a,1} + r_{b,2}) - (r_{b,1} + r_{a,2}) \quad (3)$$

untersucht. Dieser wird bei perfekter Vertauschbarkeit 0 und entfernt sich weiter von diesem Wert für Nicht-Vertauschbarkeit. Abbildung 7 (rechts) zeigt eine Vertauschbarkeitsmatrix gemäß Gleichung (3).

Es ist zu erkennen, dass für einige Temperaturkombinationen Vertauschbarkeit gegeben ist, z.B. $[r_a, r_b] = -0.001$ für 27 °C und 35 °C oder $[r_a, r_b] = -0.006$ für 27 °C und 45 °C . In diesem Fall kann davon ausgegangen werden, dass sich der Hauptalterungsmechanismus nicht ändert, da sich jeweils beide Temperaturen auf einem Ast im Arrheniusplot befinden. Dies ist ähnlich wie in der Literatur für kalendarische Alterung [20], wo für andere Zellen mittels Arrheniusanalyse gezeigt wurde, dass sich der Hauptalterungsmechanismus nicht ändert mit der Temperatur [19].

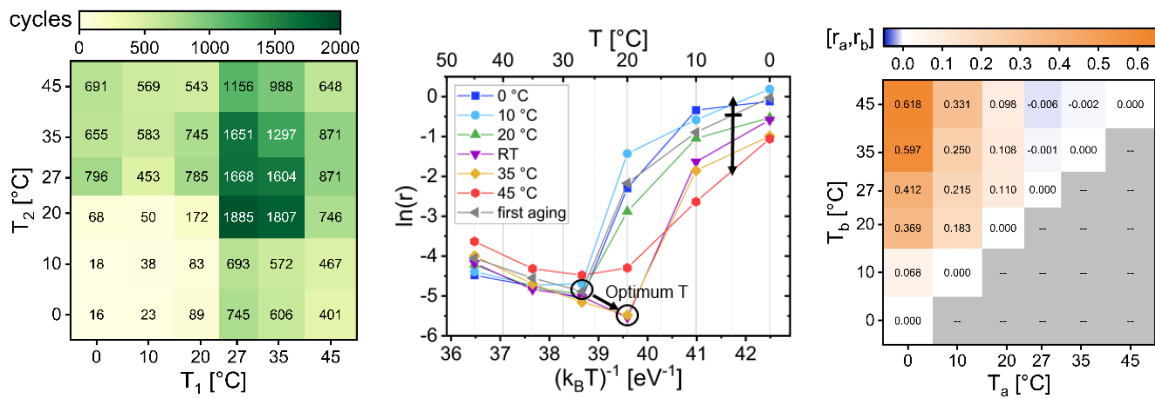


Abbildung 7 Untersuchung der Vertauschbarkeit der Alterung für Temperaturänderung von T_1 nach T_2 . Links: Maximale Zyklanzahl, Mitte: Arrheniusplot für die Alterung bei T_2 für unterschiedliche T_1 . Rechts: Untersuchung der Vertauschbarkeit mittels Kommutator, wobei 0 der perfekten Vertauschbarkeit entspricht. Reproduced from [3] with permission, CC-BY.

Für andere Fälle in Abbildung 7 (rechts) ist allerdings keine Vertauschbarkeit gegeben, z.B. $[r_a, r_b] = 0.618$ für 0 °C und 45 °C oder $[r_a, r_b] = 0.331$ für 10 °C und 45 °C. In diesen Fällen lag eine Änderung des Hauptalterungsmechanismus vor.

Dieses Verfahren wurde ebenfalls vom ZSW veröffentlicht [3].

2. Veröffentlichungen

Tabelle 1 Veröffentlichungen des ZSW im Projekt

Typ	Eingereicht/veröffentlicht bei	Titel
Vortrag	AQua-Industrietag 2022, München	Microstructural, Chemical and Electrochemical Properties of a Commercial High-Energy 21700 Lithium-ion Battery – A Best Practice Workflow Utilizing Complimentary Methods for Multiscale Characterization and Simulation
Poster	AQua-Industrietag 2022, München	ARC – Test von Li-Ionen Pouchzellen mit verschiedenen Sensoren zur Sicherheitsüberwachung
Paper	J. Power Sources 570 (2023) 233046. https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233046	Change of safety by main aging mechanism – A multi-sensor accelerating rate calorimetry study with commercial Li-ion pouch cells

<i>Vortrag</i>	<i>243rd ECS Meeting, Boston 2023</i>	<i>Safety evaluation of temperature-dependent aging mechanisms of Li-ion batteries using ARC tests with multiple online sensors</i>
<i>Poster</i>	<i>243rd ECS Meeting, Boston 2023</i>	<i>How Cyclic Aging at Different Temperatures Affects Safety of Li-Ion Pouch Cells</i>
<i>Poster</i>	<i>Kraftwerk Batterie 2023, Aachen</i>	<i>Influence of temperature dependent aging mechanism on the safety behavior of Li-ion pouch cells</i>
<i>Poster</i>	<i>Kraftwerk Batterie 2023, Aachen</i>	<i>A best practice workflow for multiscale characterization and simulation for Lithium-ion batteries – Utilizing complimentary methods to reveal the microstructural, chemical and electrochemical properties of a commercial high-energy 21700 cell</i>
<i>Poster</i>	<i>UECT 2023, Ulm</i>	<i>Investigation of Cyclic Aging Temperatures Path Dependence for Second Life Applications of Li-Ion Batteries</i>
<i>Poster</i>	<i>UECT 2023, Ulm</i>	<i>Effects of electrode curvature in Li-ion cells</i>
<i>Poster</i>	<i>UECT 2023, Ulm</i>	<i>Insights into the applications of mass spectrometry for lithium ion batteries: performance and safety aspects</i>
<i>eingeladener Vortrag</i>	<i>4th International Battery Safety Workshop (IBSW) 2023, Ulm</i>	<i>Safety Behavior of Aged Li-ion Cells – Effects of main Aging Mechanism and Multi-Sensor Detection</i>
<i>Paper</i>	<i>J. Electrochem. Soc. 170 (2023) 120519, https://doi.org/10.1149/1945-7111/ad1304</i>	<i>Effects of Electrode Curvature in Li-ion Cells</i>

<i>Paper</i>	<i>J. Power Sources 594 (2024) 233948, https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233948</i>	<i>Temperature-Driven Path Dependence in Li-Ion Battery Cyclic Aging</i>
<i>Vortrag</i>	<i>AQua-Industrietag 2023, Ulm</i>	<i>Exploring the Microstructural Architecture of Commercial High-Energy 21700 Lithium-ion Batteries and its Influence on Cell Performance and Aging</i>
<i>Poster</i>	<i>AQua-Industrietag 2023, Ulm</i>	<i>Effects of electrode curvature on the microstructure in Li-ion cells</i>
<i>Poster</i>	<i>AQua-Industrietag 2023, Ulm</i>	<i>How Cyclic Aging at Different Temperatures Affects Safety of Li-Ion Pouch Cells</i>
<i>Paper</i>	<i>J. Electrochem. Soc., J. Electrochem. Soc. 171 (2024) 010510, https://dx.doi.org/10.1149/1945-7111/ad1b7c</i>	<i>Aging mechanism for calendar aging of Li-ion cells with Si/Graphite anodes</i>
<i>Poster</i>	<i>Batterieforum 2024, Berlin</i>	<i>Cycling Temperature Path Optimization for Enhanced Second-Use Performance of Li-Ion Batteries</i>
<i>Poster</i>	<i>Batterieforum 2024, Berlin, 3. Posterpreis</i>	<i>Li-Plating – An Aging Mechanism to be avoided in 2nd-Life Applications</i>
<i>Vortrag</i>	<i>Kraftwerk Batterie 2024</i>	<i>Calendar aging behavior of Si/graphite anodes in Li-ion full cells</i>
<i>Poster</i>	<i>Kraftwerk Batterie 2024</i>	<i>Temperature-Driven Path Dependence during cyclic aging of Li-Ion Batteries</i>
<i>Poster</i>	<i>Kraftwerk Batterie 2024</i>	<i>Describing Electrode Curvature in Li-ion Cells: From Theory to Experiments</i>

Referenzen

- [1] M. Feinauer, A.A. Abd-El-Latif, P. Sichler, A. Aracil Regalado, M. Wohlfahrt-Mehrens, T. Waldmann, Change of safety by main aging mechanism – A multi-sensor accelerating

- rate calorimetry study with commercial Li-ion pouch cells, *J. Power Sources* 570 (2023) 233046. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233046>.
- [2] R. Schäfer, E. Delz, M. Kasper, V. Knoblauch, M. Wohlfahrt-Mehrens, T. Waldmann, Effects of Electrode Curvature in Li-Ion Cells, *J. Electrochem. Soc.* 170 (2023) 120519. <https://doi.org/10.1149/1945-7111/ad1304>.
- [3] M. Feinauer, M. Wohlfahrt-Mehrens, M. Hölzle, T. Waldmann, Temperature-driven path dependence in Li-ion battery cyclic aging, *J. Power Sources* 594 (2024) 233948. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233948>.
- [4] T. Waldmann, S. Gorse, T. Samtleben, G. Schneider, V. Knoblauch, M. Wohlfahrt-Mehrens, A Mechanical Aging Mechanism in Lithium-Ion Batteries, *J. Electrochem. Soc.* 161 (2014) A1742–A1747. <https://doi.org/10.1149/2.1001410jes>.
- [5] T. Waldmann, R.-G. Scurtu, K. Richter, M. Wohlfahrt-Mehrens, 18650 vs. 21700 Li-ion cells – A direct comparison of electrochemical, thermal, and geometrical properties, *J. Power Sources* 472 (2020) 228614. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2020.228614>.
- [6] T. Waldmann, S. Rössler, M. Blessing, R. Schäfer, R.-G. Scurtu, W. Braunwarth, M. Wohlfahrt-Mehrens, A Direct Comparison of Pilot-Scale Li-Ion Cells in the Formats PHEV1, Pouch, and 21700, *J. Electrochem. Soc.* 168 (2021) 090519. <https://doi.org/10.1149/1945-7111/ac208c>.
- [7] A.S. Mussa, G. Lindbergh, M. Klett, P. Gudmundson, P. Svens, R.W. Lindström, Inhomogeneous active layer contact loss in a cycled prismatic lithium-ion cell caused by the jelly-roll curvature, *J. Energy Storage* 20 (2018) 213–217. <https://doi.org/10.1016/j.est.2018.09.012>.
- [8] M. Winter, G.H. Wrodnigg, J.O. Besenhard, W. Biberacher, P. Novák, Dilatometric Investigations of Graphite Electrodes in Nonaqueous Lithium Battery Electrolytes, *J. Electrochem. Soc.* 147 (2000) 2427. <https://doi.org/10.1149/1.1393548>.
- [9] N. Delpuech, N. Dupre, P. Moreau, J.-S. Bridel, J. Gaubicher, B. Lestriez, D. Guyomard, Mechanism of Silicon Electrode Aging upon Cycling in Full Lithium-Ion Batteries, *ChemSusChem* 9 (2016) 841–848. <https://doi.org/10.1002/cssc.201501628>.
- [10] G. Kucinskis, M. Bozorgchenani, M. Feinauer, M. Kasper, M. Wohlfahrt-Mehrens, T. Waldmann, Arrhenius Plots for Li-ion Battery Ageing as a Function of Temperature, C-rate, and Ageing State – An Experimental Study, *J. Power Sources* 549 (2022) 232129. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2022.232129>.
- [11] T. Waldmann, B.-I. Hogg, M. Wohlfahrt-Mehrens, Li plating as unwanted side reaction in commercial Li-ion cells – A review, *J. Power Sources* 384 (2018) 107–124. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2018.02.063>.
- [12] E. Sarasketa-Zabala, F. Aguesse, I. Villarreal, L.M. Rodriguez-Martinez, C.M. López, P. Kubiak, Understanding Lithium Inventory Loss and Sudden Performance Fade in Cylindrical Cells during Cycling with Deep-Discharge Steps, *J. Phys. Chem. C* 119 (2015) 896–906. <https://doi.org/10.1021/jp510071d>.
- [13] T.C. Bach, S.F. Schuster, E. Fleder, J. Müller, M.J. Brand, H. Lormann, A. Jossen, G. Sextl, Nonlinear aging of cylindrical lithium-ion cells linked to heterogeneous compression, *J. Energy Storage* 5 (2016) 212–223. <https://doi.org/10.1016/j.est.2016.01.003>.
- [14] M. Ecker, N. Nieto, S. Käbitz, J. Schmalstieg, H. Blanke, A. Warnecke, D.U. Sauer, Calendar and cycle life study of Li(NiMnCo)O₂-based 18650 lithium-ion batteries, *J. Power Sources* 248 (2014) 839–851. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2013.09.143>.
- [15] S.F. Schuster, T. Bach, E. Fleder, J. Müller, M. Brand, G. Sextl, A. Jossen, Nonlinear aging characteristics of lithium-ion cells under different operational conditions, *J. Energy Storage* 1 (2015) 44–53. <https://doi.org/10.1016/j.est.2015.05.003>.

- [16] D.A. Stevens, R.Y. Ying, R. Fathi, J.N. Reimers, J.E. Harlow, J.R. Dahn, Using High Precision Coulometry Measurements to Compare the Degradation Mechanisms of NMC/LMO and NMC-Only Automotive Scale Pouch Cells, *J. Electrochem. Soc.* 161 (2014) A1364–A1370. <https://doi.org/10.1149/2.0971409jes>.
- [17] T. Waldmann, M. Wilka, M. Kasper, M. Fleischhammer, M. Wohlfahrt-Mehrens, Temperature dependent ageing mechanisms in Lithium-ion batteries – A Post-Mortem study, *J. Power Sources* 262 (2014) 129–135. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2014.03.112>.
- [18] M. Bozorgchenani, G. Kucinskis, M. Wohlfahrt-Mehrens, T. Waldmann, Experimental Confirmation of C-Rate Dependent Minima Shifts in Arrhenius Plots of Li-Ion Battery Aging, *J. Electrochem. Soc.* 169 (2022) 030509. <https://doi.org/10.1149/1945-7111/ac580d>.
- [19] T. Waldmann, M. Kasper, M. Wohlfahrt-Mehrens, Optimization of Charging Strategy by Prevention of Lithium Deposition on Anodes in high-energy Lithium-ion Batteries – Electrochemical Experiments, *Electrochimica Acta* 178 (2015) 525–532. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2015.08.056>.
- [20] L. Su, J. Zhang, J. Huang, H. Ge, Z. Li, F. Xie, B.Y. Liaw, Path dependence of lithium ion cells aging under storage conditions, *J. Power Sources* 315 (2016) 35–46. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2016.03.043>.