

Schlussbericht des Fraunhofer-Instituts für Fertigungstechnik und angewandte Materialforschung IFAM zum Verbundprojekt**„BeLiMIA – Beobachtung von Lithiumionenzellen mittels Zusammenführung von Messmethoden zur Identifizierung und Quantifizierung von Alterungsvorgängen“**

gefördert im Rahmen des BMBF-Kompetenzclusters
Batterienutzungskonzepte ‚BattNutzung‘

Projektkoordinator: Fraunhofer-Institut für Siliziumtechnologie, Fraunhoferstraße 1,
25524 Itzehoe

Projektpartner: Fraunhofer-Institut für Fertigungstechnik und angewandte
Materialforschung IFAM, Wiener Straße 12, 28359 Bremen

Teilvorhaben seitens des IFAM:

Post-mortem Analyse der gealterten Zellkomponenten, Impedanz-basierte
Charakterisierung und **Datenanalyse – PostData**

Förderkennzeichen: **03XPO350**

Laufzeit: 01.01.2021 – 31.03.2024

Ansprechpartner:

Dr. Daniela Fenske

☎ 0171 9767 581

✉ daniela.fenske@ifam.fraunhofer.de

Dr. Dominique Koster

☎ 0421 2246 236

✉ dominique.koster@ifam.fraunhofer.de

I. Kurze Projektdarstellung**1 Aufgabenstellung**

Das übergeordnete Projektziel von BeLiMIA bestand in der Untersuchung des Alterungsverhaltens von Lithiumionenbatterien (LIBs) und der Identifizierung und Quantifizierung dominanter Degradationsprozesse durch eine umfassende Diagnostik der Zellen mithilfe von elektrochemischen und optischen Mess- und Analysemethoden. Ein Hauptarbeitsziel lag hierbei in der Aufklärung der Zellalterung durch die Integration von Glasfasersensorik in die Zellmaterialien. Im Gegensatz zu den elektrochemischen Verfahren, sollte durch die lokale Untersuchung der Zellen mithilfe der Glasfasersensorik ein tieferes Verständnis über das Alterungsverhalten erlangt

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

werden. Die Optimierung der Sensoren und ihrer Einbringung in die Zelle lag dabei im zentralen Fokus des Projekts.

Für das Fraunhofer IFAM lag ein wesentlicher Arbeitsschwerpunkt auf der **elektrochemischen Charakterisierung** von Zellen mithilfe von hochpräzisen Analysemethoden, wie Differenziellen Spannungsanalysen (DVA), Inkrementellen Kapazitätsanalysen (ICA) und der Berechnung der Verteilungsfunktion der Relaxationszeiten (*engl. Distribution of Relaxation Times, DRT*). Weiterhin hat sich das IFAM mit der **Zusammenführung der elektrischen und optischen Messdaten** befasst. In diesem Zusammenhang wurde eine **qualitative und quantitative Alterungsdiagnostik** der Zellen durchgeführt. Parallel dazu wurde am IFAM die Datenablage und -analyse systematisiert, was durch die Entwicklung einer geeigneten **Datenbank** umgesetzt wurde. Hierbei wurden verschiedene Datenformate in die Datenbank implementiert, verwaltet und teils automatisiert verarbeitet.

2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

BeLiMIA ist ein wissenschaftliches Verbundprojekt, das von drei Fraunhofer-Instituten bearbeitet wurde. Neben dem Verbundkoordinator, dem Fraunhofer **ISIT**, das sich im Rahmen des Vorhabens mit der Fertigung und Testung von sensorintegrierten Lithiumionenzellen beschäftigt hat, waren die Fraunhofer-Partner **HHI** und **IFAM** beteiligt. Während am **HHI** die Entwicklung und Herstellung optischer Glasfasersensoren zur zerstörungsfreien Messung mechanischer, thermischer und chemischer Zustände im Zellinneren stattgefunden hat, wurden am **IFAM** elektrische Messungen der Zellalterung und post-mortem Analysen durchgeführt. Weiterhin war das **IFAM** für die im Projekt erforschte Signalzusammenführung, Datenauswertung und -analyse zur Quantifizierung der Alterungsprozesse verantwortlich. Dazu wurde am **IFAM** ein spezifisch an die Projektergebnisse angepasstes Datenbanksystem (DBS) aufgebaut.

3. Planung und Ablauf des Vorhabens

Die Projektstruktur war so angelegt, dass zunächst in drei konsortiumsübergreifenden Startpaketen die Rahmenbedingungen zur Durchführung der im Projekt geplanten experimentellen Untersuchungen festgelegt wurden. Neben der Definition der zu untersuchenden Zellchemien und Testszenarien, wurden auch Anforderungskriterien

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

an die Sensorik definiert. Darüber hinaus wurden am IFAM Konzepte zum Datentransfer sowie eine geeignete Datenbankstruktur erarbeitet.

Darauf aufbauend fand im AP 1 die methodische Entwicklung der **Glasfasersensoren zur Zustandsbestimmung** und die Zellfertigung (HHI, ISIT) statt. Dabei wurden faseroptische Sensoren hergestellt, mit denen Temperaturfelder und Volumenänderungen präzise detektiert werden können. Die Glasfasersensorik wurde für den Einsatz zur Zellcharakterisierung optimiert (HHI) und schließlich in die Elektrode integriert (ISIT), um neue Erkenntnisse zur Zellalterung zu erlangen. Darüber hinaus wurde das Degradationsverhalten der gefertigten Sensoren betrachtet (HHI, IFAM).

Im darauffolgenden AP 2 erfolgte die **Messung der Zellalterung** (ISIT, IFAM, HHI). Hierzu wurden die in SP festgelegten Zellcharakterisierungsmethoden herangezogen und auf die Untersuchung der Zellalterung an sensorintegrierten Zellen abgestimmt und optimiert. Ein Teil der am ISIT hergestellten Zellen wurde dabei mit der Glasfasersensorik oder einer Referenzelektrode (RE) versehen.

Nachfolgend wurden im AP 3 die **Signalzusammenführung zur Alterungsbestimmung und Datenanalyse** (IFAM, HHI) adressiert. Hierbei lag der Fokus insbesondere auf dem Datenmanagement und der virtuellen Datenverarbeitung (IFAM). In diesem Zusammenhang wurde eine Datenplattform zur nachhaltigen Datensicherung und effizienten Datenverwertung erstellt.

Durch die Zusammenführung von optischen und elektrischen Daten konnten alterungsrelevante Parameter identifiziert und dominante Degradationsprozesse quantifiziert werden (IFAM, HHI).

Im abschließenden AP 4 wurde eine konsortiumsübergreifende Bewertung der im Projekt eingesetzten Technologien und Methoden durchgeführt.

Die Verknüpfung der entsprechenden Haupt- und Unterarbeitspakete ist im folgenden Projektstrukturplan (Abbildung 1) dargestellt.

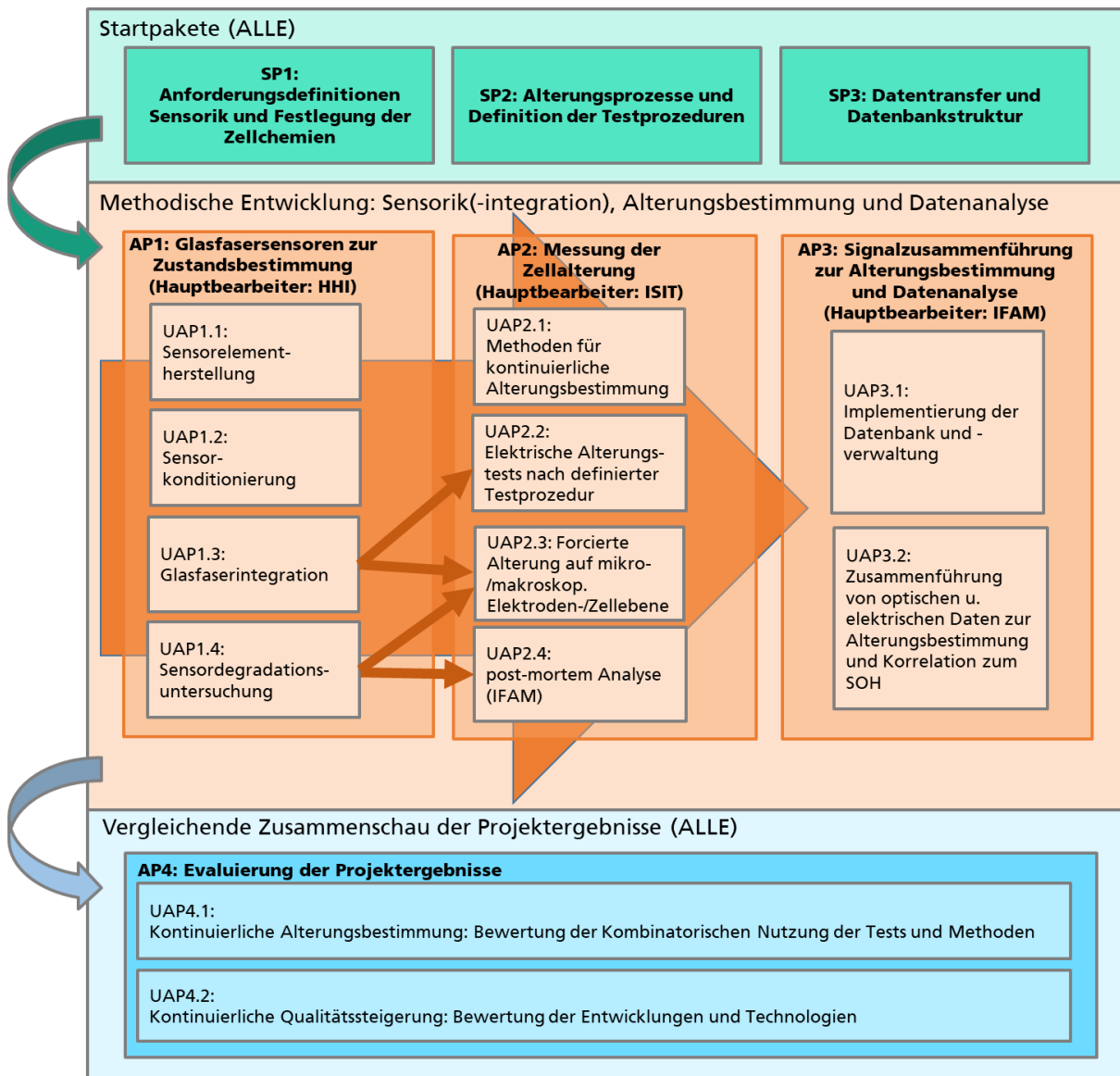


Abbildung 1: Projektstrukturplan BeLiMIA

4. wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde

Der im Bereich der Batterieforschung häufig verwendete Begriff „Alterung“ ist wenig präzise und wird üblicherweise über den sogenannten Gesundheitszustand (*engl. State of Health, SoH*) erfasst, der das Verhältnis der aktuell verfügbaren Kapazität der Zelle zur initialen Kapazität beschreibt [1]. Weitere Definitionen wie „*State of Function*“ (SoF) und „*Remaining Useful Life*“ (RuL) existieren ebenfalls [2, 3]. Diese Größen leiten sich von der Kapazität ab, berücksichtigen aber nicht den Widerstand, der besonders im Hochleistungsbereich wichtig ist. Die auftretenden Alterungseffekte sind stark systemabhängig und werden neben der Zellchemie und dem Zellformat entscheidend durch die Betriebsbedingungen beeinflusst. Die Degradation der Zelle macht sich durch eine Verschlechterung der elektrochemischen Eigenschaften, wie

Kapazitäts-, Leistungs- und Energieverlust, Erhöhung der Impedanz oder mechanische Veränderungen der Zelle, wie z.B. Deformation oder Undichtigkeit bemerkbar [4-8]. Die Gründe der Alterung liegen in der Zersetzung der Elektrode und der Veränderung der Grenzschicht zwischen dem Elektrolyten und der Elektrode [8]. Der Zusammenhang zwischen Alterungsprozess und erfassbarer Messgrößen ist in Abbildung 2 zusammengefasst.

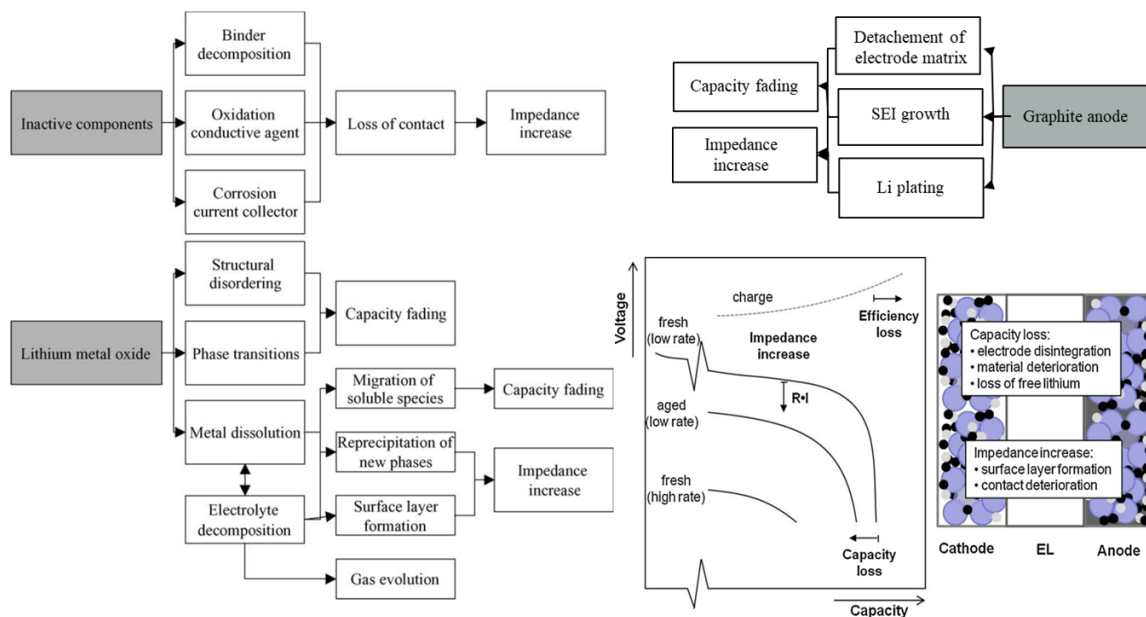


Abbildung 2: Übersicht über die in Kathoden und Anoden ablaufenden Alterungsprozesse in LIBs und die damit verknüpften messbaren Größen [8,9].

Zu den Hauptmechanismen gehören im Allgemeinen die Alterung des aktiven Materials, die Degradation und Veränderung der Elektrodenkomponenten, wie Leitadditiven, Bindemitteln oder des Stromableiters, die Zersetzung von Elektrolytkomponenten, die Bildung von Oberflächenfilmen und die Interaktion von Alterungsprodukten in der Elektrode. Je nach Zyklisierungs- und Lagerungsbedingung kann die Alterung durch diese Effekte unterschiedlich stark beeinflusst werden.

Eine umfassende Diagnostik mithilfe unterschiedlicher Mess- und Analysemethoden ist daher essenziell um ein detailliertes Verständnis über das Alterungsverhalten von Batteriezellen zu erhalten. Grundsätzlich werden Batteriezellen mit elektrischen Messverfahren charakterisiert. Über die Aufnahme unterschiedlicher Strom- und Spannungsverläufe werden Informationen über den Alterungszustand der Zellen gewonnen. Die dabei erhobenen Messdaten können mithilfe von DVA und ICA analysiert werden. Die DVA ist eine Charakterisierungsmethode einer Vollzelle, bei der

die während eines Lade- bzw. Entladevorgangs aufgenommene Spannungskurve nach der Ladung abgeleitet (dU/dQ) und als Funktion der Kapazität dargestellt wird. Anhand dieser Methode lassen sich vor allem Alterungseffekte der Anode und die Verschiebung des Elektrodenbalancing untersuchen [10]. Im Gegensatz dazu wird bei der ICA, die während des Lade- bzw. Entladevorgangs gemessene Kapazität nach der Spannung abgeleitet (dQ/dU) und als Funktion der Spannung aufgetragen. Hierdurch können auch kathodenseitige Degradationsprozesse sichtbar gemacht werden.

Eine weitere Messmethodik, die häufig zur Alterungsdiagnostik von Batteriezellen eingesetzt wird, ist die Elektrochemische Impedanzspektroskopie (EIS). Aufgrund der Vielzahl an Prozessen, die sich zum Teil überlagern, weisen LIBs komplexe Impedanzspektren auf. In Abbildung 3 sind die dynamischen, frequenzabhängigen Prozesse, die in elektrochemischen Systemen ablaufen (grün) als Funktion ihrer Zeitkonstanten dargestellt. Weiterhin zeigt die Abbildung, welche Testmethoden zur Erfassung der verschiedenen Prozesse geeignet sind.

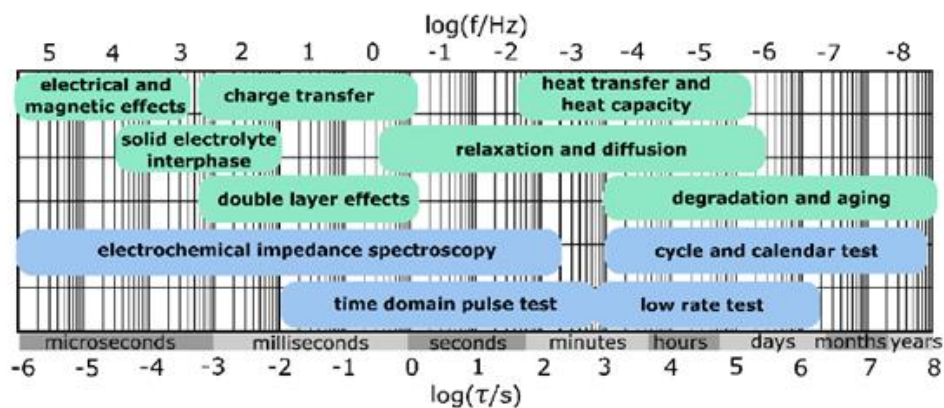


Abbildung 3: Geeignete Testmethoden (blau) zur Erfassung dynamischer, frequenzabhängiger Prozesse in elektrochemischen Systemen (grün) und dazugehörige Zeitkonstanten [11].

Durch die Auswertung von Impedanzspektren mittels DRT-Analysen können Impedanzdaten von der Fourierebene in die Zeitebene überführt werden, wodurch Widerstände im DRT-Spektrum in Form von Peaks sichtbar werden, die anhand ihrer zugehörigen Zeitkonstanten spezifischen Polarisationsprozessen zugeordnet werden können [12, 13].

Neben der Verwendung geeigneter, hochpräziser Messmethoden, spielt bei der Alterungsdiagnostik von Zellen die Aufbereitung und Zusammenführung der Messdaten eine entscheidende Rolle, da sie die Genauigkeit und Aussagekraft der

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

Messungen enorm beeinflussen. Eine Datenbank bezeichnet eine systematisch strukturierte, langfristig verfügbare Sammlung von Daten. Als Datenbasis bezeichnet man die Daten eines Aufgaben- bzw. Anwendungsgebietes. [14] Ein DBS setzt sich aus einer Datenbasis und einem Datenbankmanagementsystem (DBMS) zusammen. Das DBMS ist ein Softwaresystem zur Administration von Daten. Es stellt die Schnittstelle zwischen Benutzer und Datenbasis dar und dient der effizienten Speicherung und Abfrage der strukturierten Daten. Die Datenbasis enthält neben den reinen Nutzdaten auch die zur Verwaltung des gesamten Systems nötigen Metadaten. Der Aufbau eines DBS erfolgt in mehreren Schritten. Der erste ist die Identifizierung der Informationsstruktur, wobei Spezifikationen und Anforderungen erfasst werden. In einem zweiten Schritt wird die fachliche Konzepterstellung und Festlegung der Semantik adressiert. In einem dritten Schritt erfolgt die Umsetzung des Konzepts bspw. in ein relationales Datenmodell und schließlich die Implementierung der Datenbank und Benutzeroberfläche. Es existieren einige open source DBMS-Lösungen (MongoDB, MySQL, PostgreSQL etc.), auf die zum Teil in diesem Projekt zurückgegriffen wurde. [15] Die Integration von Daten aus verschiedenen Quellen und deren konsistente Verarbeitung mithilfe von DBS ermöglicht umfassende Analysen, was letztlich zu einer präziseren Batteriezustandsbestimmung führt.

- [1] A. Widodo, M.-C. Shim, W. Caesarendra, B.-S. Yang, Intelligent prognostics for battery health monitoring based on sample entropy, *Expert Systems with Applications* 38 (9) (2011) 11763-11769.
- [2] E. Meissner, G. Richter, Battery monitoring and electrical energy management: Precondition for future vehicle electric power systems, *Journal of Power Sources* 116 (1-2) (2003) 79-98, selected Papers Presented at the Eighth European Lead Battery Conference.
- [3] Q. Zhang, R. E. White, Calendar life study of li-ion pouch cells: Part 2: Simulation, *Journal of Power Sources* 179 (2) (2008) 785792.
- [4] J. Groot, *State-of-Health Estimation of Li-ion Batteries: Aging Models*. Göteborg 2014
- [5] Y.-K. Sun, S.-T. Myung, B.-C. Park, J. Prakash, I. Belharouak, K. Amine, High-energy cathode material for long-life and safe lithium batteries. *Nat Mater* 8 (4), S. 320–324 (2009)
- [6] S. S. Choi, H. S. Lim, Factors that affect cycle-life and possible degradation mechanisms of a Li-ion cell based on LiCoO₂. *Journal of Power Sources* 111 (1), S. 130–136 (2002)
- [7] B. Ketterer, U. Karl, D. Möst, S. Ulrich, *Lithium-Ionen Batterien: Stand der Technik und Anwendungspotential in Hybrid-, Plug-In Hybrid- und Elektrofahrzeugen 2009* (Forschungszentrum Karlsruhe GmbH)
- [8] J. Vetter, P. Novák, M. R. Wagner, C. Veit, K.-C. Möller, J. O. Besenhard, M. Winter, M. Wohlfahrt-Mehrens, C. Vogler, A. Hammouche, Ageing mechanisms in lithium-ion batteries. *Journal of Power Sources* 147 (1-2), S. 269–281 (2005)
- [9] M. Wohlfahrt-Mehrens, C. Vogler, J. Garche, Ageing mechanisms of lithium cathode materials, *J. Power Sources* 127, 58-64 (2004)

[10] M. Bauer, Elektrische und mechanische Verfahren zur Detektion von Alterungseffekten in Lithium-Ionen-Batterien. München (2017)

[11] M.A. Danzer, Generalized Distribution of Relaxation Times Analysis for the Characterization of Impedance Spectra, Batteries 5, 53 (2019)

[12] E.R.V. Schweidler. Studien über die Anomalien im Verhalten der Dielektrika. Annalen der Physik, 329:711–770 (1907)

[13] K.W. Wagner. Zur Theorie der unvollkommenen Dielektrika. Annalen der Physik, 345(5):817–855 (1913)

[14] C. Horn, I.O., Kerner, P. Forbrig, Lehr- und Übungsbuch Informatik Bd. 1, Fachbuchverlag Leipzig (2001)

[15] <https://entwickler.de/online/datenbanken/datenbanken-grundlagen-und-entwurf-115676.html>

II. Eingehende Ergebnisdarstellung

Ein Hauptarbeitsschwerpunkt des IFAM im Teilvorhaben ‚PostData – Post-mortem Analyse der gealterten Zellkomponenten, Impedanz-basierte Charakterisierung und Datenanalyse‘ lag in der **Durchführung elektrischer und analytischer Messungen** und der Untersuchung der Zellalterung. In diesem Zusammenhang war das IFAM insbesondere für die **Signalzusammenführung, Datenauswertung und -analyse zur Quantifizierung der Alterungsprozesse** verantwortlich. Darüber hinaus befasste sich das IFAM mit der systematischen Datenverwaltung und der automatisierten Datenverarbeitung, welche durch den **Aufbau einer geeigneten Datenbank** umgesetzt wurde. Als wesentliche Arbeitsziele wurden hierbei eine schnelle Erkennung von Alterungsprozessen mithilfe effizienter elektrochemischer Analysemethoden sowie die Identifizierung von Korrelationen zwischen Alterungsdaten, die mithilfe unterschiedlicher Test-, bzw. Analysemethoden generiert wurden, angestrebt. In der folgenden Abbildung 4 ist der Zeitplan des Teilprojektes dargestellt.

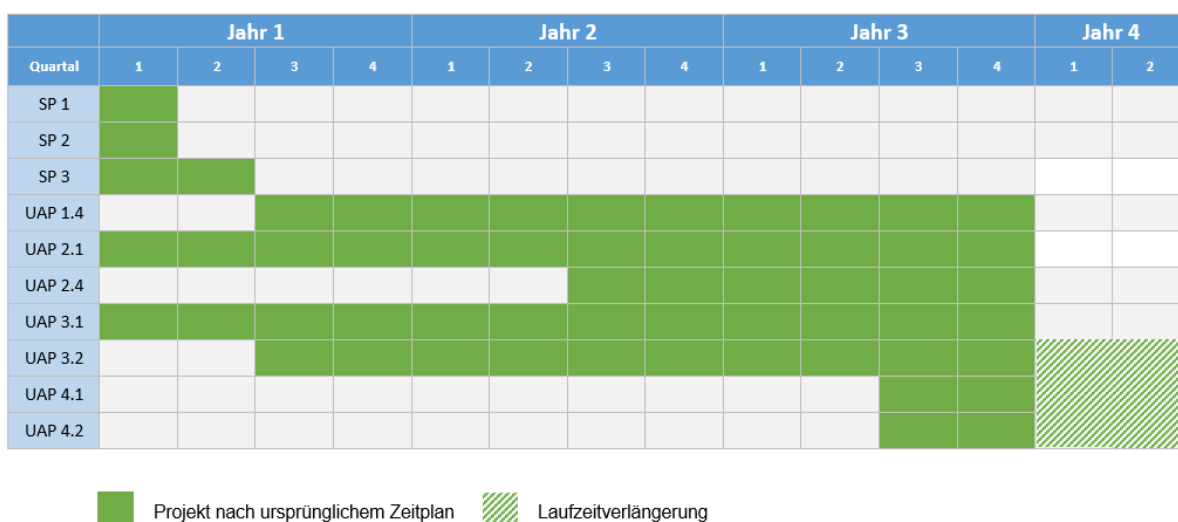


Abbildung 4: Arbeits- und Zeitplanung IFAM-Teilvorhaben PostData.

Die Projektergebnisse des IFAM sind nachfolgend detailliert aufgeführt.

SP 1: Anforderungsdefinitionen Sensorik und Festlegung der Zellchemien

Im Startpaket SP 1 hat das IFAM in gemeinsamer Abstimmung mit den Projektpartnern HHI und ISIT folgende Zellchemien und Formate identifiziert, an denen im Rahmen des Vorhabens Alterungsanalysen an den verschiedenen Instituten durchgeführt wurden:

- NMC 111/Graphit (9,8 x 11,5 cm²-Format)
- NMC[°]622/Graphit (2 x 2 cm² + 9,8 x 11,5 cm²-Format)
- NMC[°]811/Graphit (9,8 x 11,5 cm²-Format)

Während die Zellen im 2 x 2 cm²-Format ohne zusätzliche Sensorik untersucht wurden, stand bei den großformatigen Zellen insbesondere die Sensorintegration im Fokus.

SP 2: Alterungsprozesse und Definition der Testprozeduren

Im Rahmen von BeLiMIA wurden die in SP 1 definierten Testzellen elektrochemisch charakterisiert (Tabelle 1).

Tabelle 1: Elektrochemische Test- und Analysemethoden.

Elektrochemische Messungen	Analysemethoden
Zyklische Alterungstests ISIT/IFAM/HHI	Differenzielle Spannungsanalyse (DVA) IFAM/HHI
	Inkrementelle Kapazitätsanalyse (ICA) IFAM/HHI
Elektrochemische Impedanzspektroskopie IFAM	Berechnung der Verteilungsfunktion der Relaxationszeiten (DRT) IFAM

Am IFAM wurden zu Beginn des Vorhabens Voruntersuchungen (Zyklentests + EIS/DRT-Analysen) an kleinformatigen NMC 622/Graphit-Zellen (2 x 2 cm²-Format) aus eigener Herstellung durchgeführt. Darüber hinaus wurden am IFAM NMC 111/Graphit-Zellen im 9,8 x 11,5 cm²-Format (ohne integrierte Sensorik), die vom ISIT zur Verfügung gestellt wurden, zur umfassenden Alterungsdiagnostik mittels EIS/DRT und DVA/ICA herangezogen.

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

Nach erfolgreich abgeschlossener Optimierung und Integration der Glasfasersensorik in das Elektrodenmaterial (durchgeführt von HHI und ISIT) wurden außerdem sensorintegrierte NMC 622/Graphit-Pouch-Zellen (9,8 x 11,5 cm²) sowie baugleichen Referenzzellen ohne Sensorik vom ISIT bereitgestellt und am IFAM zusätzlichen Messungen unterzogen.

Zur Charakterisierung der verschiedenen Zelltypen, wurden am IFAM unterschiedliche Testprozeduren entwickelt, die nachfolgend beschrieben werden. Zur Durchführung von zyklischen Alterungstests an 2 x 2 cm²-NMC 622/Graphit-Zellen wurde auf ein am IFAM bestehendes Testszenario zurückgegriffen. Zusätzlich wurde ein neues Testprofil zur Durchführung von EIS-Messungen definiert:

EIS-Messung Teil 1:

- Laden und Entladen mit 0.1 C im Konstantstrom-Modus (CC-Modus).
- über einen gesamten Vollzyklus (Spannungsbereich 3.0 V bis 4.2 V) wurde bei jeder Ladezustandsänderung von 5% je ein Impedanzspektrum aufgenommen

EIS-Messung Teil 2:

- Laden und Entladen mit 1 C (Laden: Konstantstrom/Konstantspannungs-Modus (CCCV-Modus), Entladen: CC-Modus)
- über die Dauer von 10 Zyklen wurde bei jeder vollständigen Ladung (100% State-of-Charge, SoC) und Entladung (0% SoC) jeweils eine EIS-Messung durchgeführt.

Im Gegensatz dazu wurden die NMC 111/Graphit-Zellen im 9,8 x 11,5 cm²-Format (ohne integrierte Sensorik) zur forcierten Zellalterung am IFAM mit einer C-Rate von 1 C zyklisiert (Lastzyklen), wobei in zuvor festgelegten Intervallen sog. Checkup-Tests durchlaufen wurden (10 Lastzyklen nach dem 1. Checkup und 30 Lastzyklen nach jedem weiteren Checkup), in denen der Zustand der Batteriezellen untersucht wurde. Diese bestanden aus drei aufeinanderfolgenden Testschritten: der SoH-Bestimmung, die als Grundlage zur Durchführung von DVA und ICA herangezogen wurde, der IR-Drop-Messung und der EIS-Messung, die als Basis für DRT-Analysen diente. Nach jedem Checkup-Test wurde ein Ratentest durchgeführt, um die Zyklenfestigkeit der Zellen zu testen. Anschließend wurden die Zellen mithilfe von Lastzyklen gealtert und wieder mittels Checkup-Test charakterisiert. Diese Testabfolge wurde wiederholt, bis die Zellen einen SoH von 80% erreicht hatten (Abbildung 5).

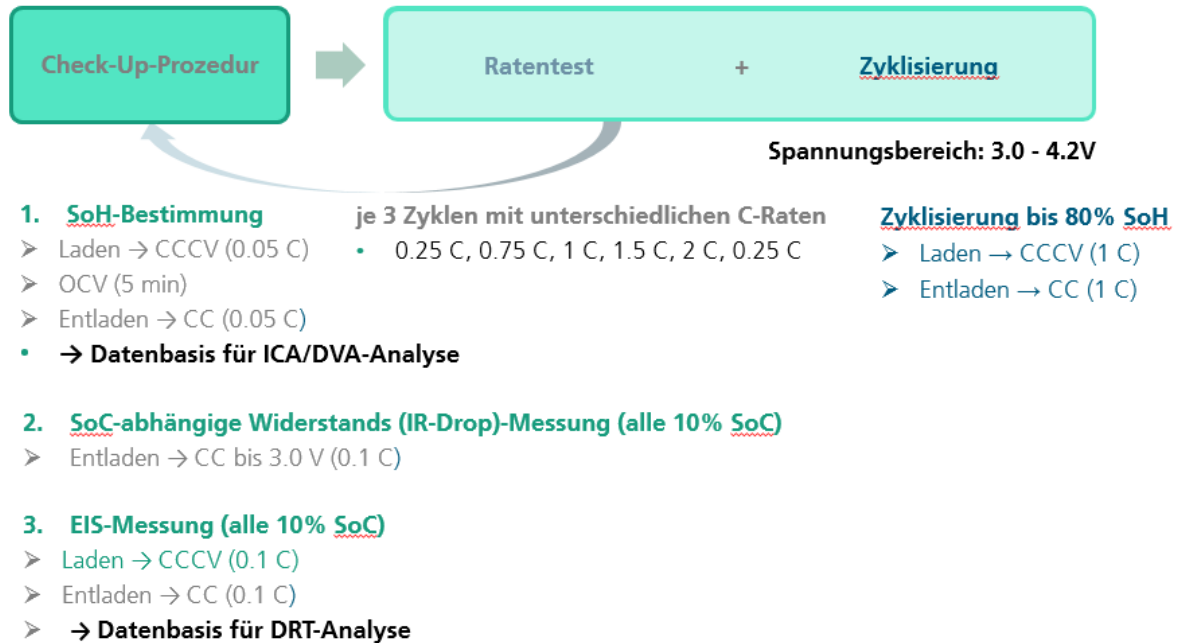


Abbildung 5: Zur Diagnostik von NMC 111/Graphit-Zellen (9,8 x 11,5 cm²-Format) entwickelte Testprozedur.

Zur Alterungsdiagnostik der NMC 622/Graphit-Zellen im 9,8 x 11,5 cm²-Format (mit und ohne integrierte Sensorik) wurde das zuvor beschriebene Testprotokoll an die höheren Flächenbelastungen der sensorintegrierten Zellen angepasst, indem die C-Rate während der Lastzyklen auf 0.5 C gesetzt wurde. Darüber hinaus wurde auf die Durchführung von Ratentests verzichtet, um die Zellen nicht zu stark zu belasten.

SP 3: Datentransfer und Datenbankstruktur

In SP 3 wurde in gemeinsamer Absprache zwischen den Projektpartnern ein Konzept zum Datentransfer erarbeitet, das einen reibungslosen Datenfluss der im Projekt generierten experimentellen Daten ermöglichen sollte. Zum Austausch von projektbezogenen Dateien wurde vom IFAM in der Fraunhofer ownCloud-Software ein BeLiMIA-Account angelegt.

Parallel dazu wurde am IFAM eine Datenbankstruktur erarbeitet, die in UAP 3.1 technisch umgesetzt wurde. Dazu wurde zunächst ein allgemeines Metadatenschema definiert (Tabelle 2), das als Grundlage für die im ersten Projektjahr vom IFAM erarbeitete Datenbankstruktur diente.

Tabelle 2: Allgemeines Metadatenschema

Messgerät	Messung	Probe (Zelle)	Datei
<ul style="list-style-type: none"> ▪ Hersteller ▪ Modellbezeichnung ▪ Seriennummer ▪ Gerätesoftware ▪ Betriebsmodus ▪ Beschaffungsdatum ▪ Geräteverantwortlicher ▪ Standort 	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Experimentator ▪ Zeitstempel ▪ Startzeitpunkt der Messung ▪ Endzeitpunkt der Messung ▪ gesamte Messdauer ▪ Messbedingungen 	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Hersteller ▪ Zelltyp ▪ Zellformat ▪ Zellchemie ▪ Nennkapazität 	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Dateiname (Experiment-ID) ▪ Erstelldatum ▪ Dateigröße ▪ Dateiformat

Darüber hinaus wurden zusätzliche, Methoden-spezifische Messeinstellungen festgelegt, die in Form von Metadaten zu den jeweiligen Messungen hinterlegt wurden (siehe Tabelle 3). Die Gesamtheit aller Metadaten ermöglichte eine transparente und verständliche Dokumentation der im Projekt generierten Forschungsdaten und zielte darauf ab, die Daten auffindbar, zugänglich, interoperabel und wiederverwendbar (FAIR) zu machen.

Tabelle 3: Methoden-spezifische Messeinstellungen

Zyklentest	Impedanzspektroskopie	Dehnungs- und Temperaturmessung
<ul style="list-style-type: none"> ▪ Anzahl der Messpunkte ▪ Schrittdauer ▪ Programmdauer ▪ Entladestromrate ▪ Ladestromrate 	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Frequenzbereich ▪ Anzahl der Messpunkte pro Dekade ▪ Amplitude des Eingangssignals ▪ Bandweite ▪ Strom- bzw. Spannungsbereich ▪ Ruhestrom 	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Abtastfrequenz ▪ Umgebungstemperatur

Weiterhin wurden für die unterschiedlichen Methoden relevante Messparameter festgelegt und die bei der Messung anfallenden Datenformate sowie typische Dateigrößen identifiziert (Tabelle 4).

Tabelle 4: Relevante Messparameter, Dateigrößen und Dateiformate für unterschiedliche Messmethoden

Messmethode	Relevante Messparameter	Einheit	Dateigröße	Datei-format
Impedanzspektroskopie	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Impedanz (Imaginärteil) ▪ Impedanz (Realteil) ▪ Frequenz ▪ Amplitude des Ausgangssignals 	<ul style="list-style-type: none"> Ω Ω Hz V bzw. A 	KB	.csv
Opt. Sensormessung	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Wellenlänge 	nm	MB	.txt
Zyklentest	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Spannung ▪ Strom ▪ Temperatur ▪ Energie ▪ Kapazität ▪ Zyklusnummer 	<ul style="list-style-type: none"> V A T Wh Ah [] 	MB	.txt

Im Rahmen des Projektes wurden die verschiedenen Messgrößen zusammengeführt, um alterungsrelevante Parameter zu identifizieren (UAP 3.2). Durch die Erstellung automatisierter Workflows wurde eine teilweise automatisierte Datenverarbeitung umgesetzt. Basierend auf den zuvor festgelegten Mess- und Analysemethoden wurde am IFAM eine Basis-Datenbankstruktur erarbeitet, die in Abbildung 6 schematisch dargestellt ist. Die technische Realisierung der Datenbankstruktur wird in UAP 3.1 detailliert erläutert.

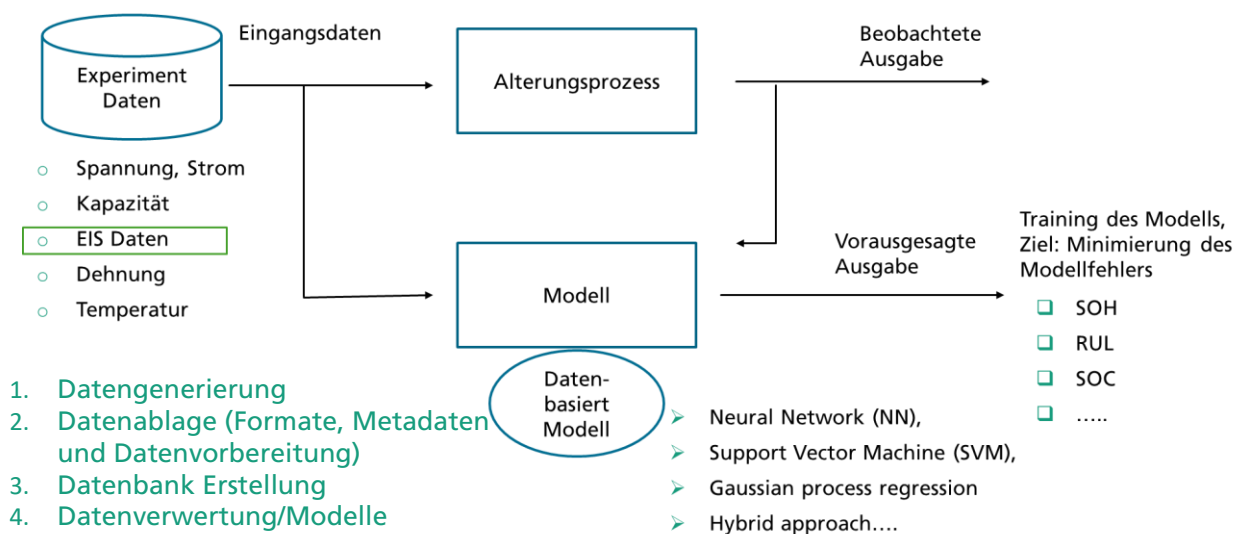


Abbildung 6: Schematische Darstellung der Datenbank-Basisstruktur.

UAP 1.4: Sensordegradationsuntersuchung

Um zu prüfen, ob die in das Anodenmaterial der Zellen integrierte Glasfaser während des Alterungsvorgangs beschädigt wurde, wurden post-mortem-Analysen an einer gealterten, sensorintegrierten Zelle NMC 622/Graphit-Zelle durchgeführt. Hierbei wurde die Glasfaser in der Zelle freigelegt und in verschiedenen Bereichen mithilfe eines Lasermikroskops untersucht. Zusätzlich wurde als Referenz ein außerhalb der Zelle liegender Bereich der Glasfaser betrachtet.

Abbildung 7 zeigt die lasermikroskopischen Aufnahmen, die an der Referenzstelle (Abbildung 7(a)) und an einem exemplarisch ausgewählten Bereich der innenliegenden Glasfaser (Abbildung 7(b)), erzeugt wurden.

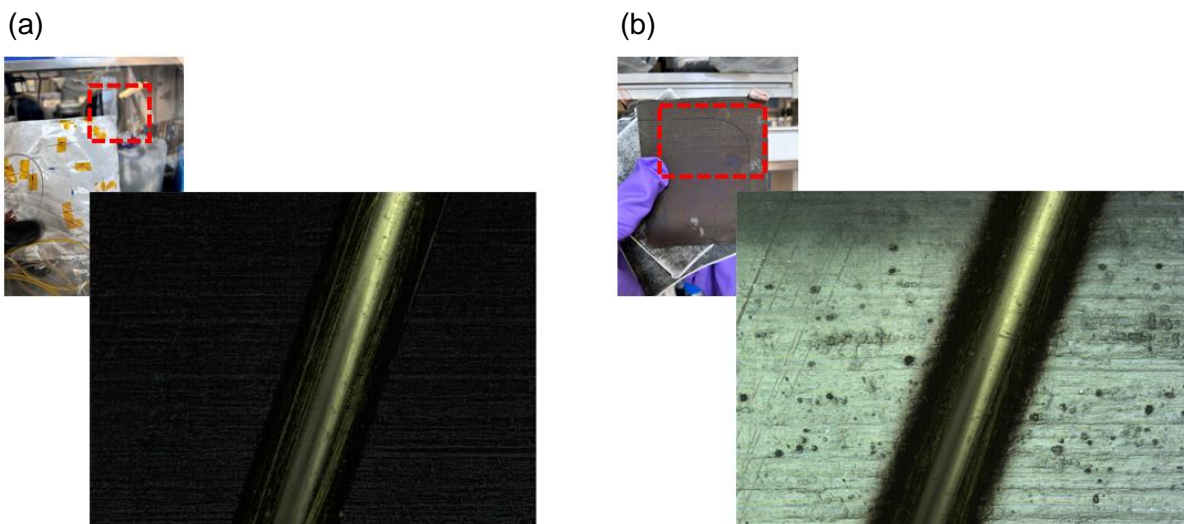


Abbildung 7: Lasermikroskopische Aufnahmen an einer äußeren Referenzstelle (a) und an einem exemplarisch ausgewählten innenliegenden Bereich (b) der Glasfaser an einer gealterten NMC 622/Graphit-Zelle.

Der Vergleich beider Aufnahmen zeigt, dass die Glasfaser in den betrachteten Bereichen nahezu gleich aussieht und somit während des Alterungsvorgangs keine erkennbaren Schädigungen davongetragen hat. Das gleiche Ergebnis wurde an allen untersuchten Bereichen der innenliegenden Glasfaser erzielt. Sowohl das Hüllenmaterial, als auch die Glasfaser waren nach der Zyklisierung der Zelle noch vollständig intakt. Die Tatsache, dass auch nach 300 Zyklen noch stabile Sensorsignale erfasst werden konnten, bestätigt die Annahme, dass die integrierte Glasfaser eine hohe Langzeitstabilität aufweist und nicht durch die Zelldegradation beeinflusst wurde.

UAP 2.1: Methoden für kontinuierliche Alterungsbestimmung

In UAP 2.1 wurde am IFAM das Degradationsverhalten der in SP 1 definierten Batteriezellen mithilfe von elektrochemischen Test- und Analysemethoden untersucht.

Zunächst wurden die am IFAM gefertigten NMC 622/Graphit-Zellen im 2 x 2 cm²-Format im Rahmen von Voruntersuchungen mittels EIS (siehe SP 2) charakterisiert. In Abbildung 8 sind die an einer exemplarisch ausgewählten kleinformatigen Testzelle gemessenen Impedanzdaten in Form von Nyquist Spektren (Abbildung 8(a)) dargestellt. Alle Spektren wurden mittels Kramers-Kronig Gültigkeitstest validiert. Hierbei wird überprüft, ob die Beziehung zwischen dem realen und dem imaginären Teil der Impedanz (Z_{real} , Z_{im}) die Bedingungen von Linearität, Kausalität und Zeitinvarianz erfüllt (Abbildung 8(b)).

Die Nyquist Spektren weisen einen großen Halbkreis im hohen bis mittleren Frequenzbereich und einen kleinen Halbkreis bei niedrigen Frequenzen auf. Als Folge

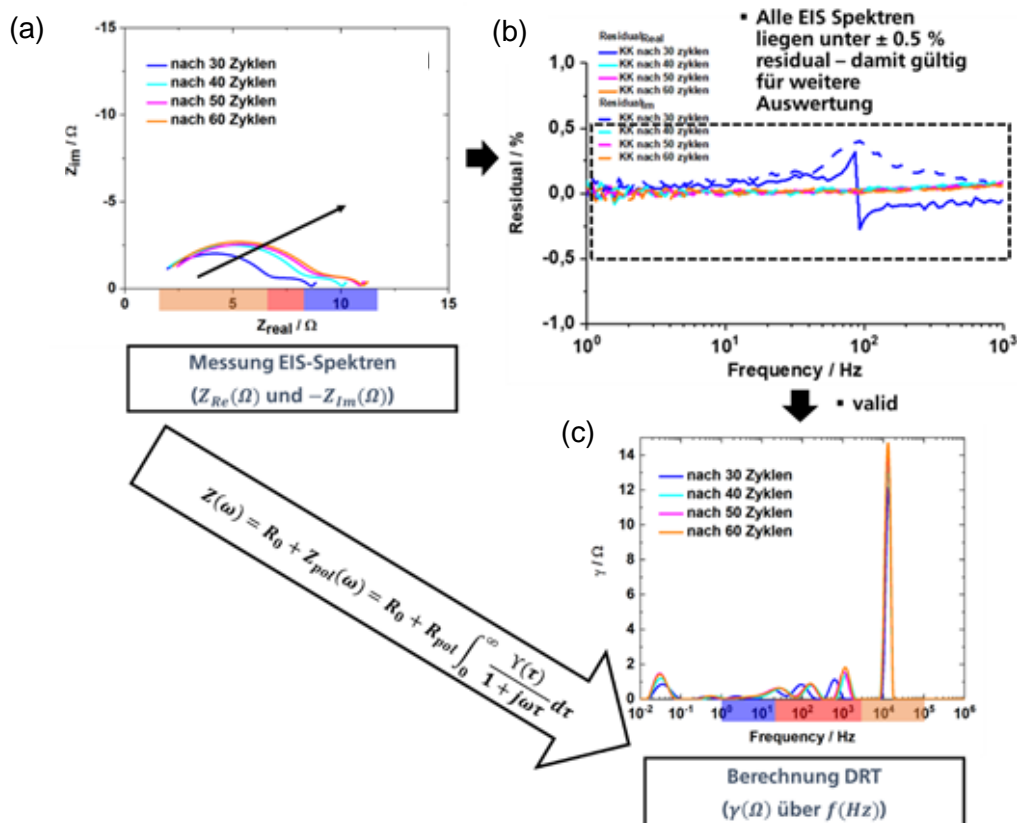


Abbildung 8: Impedanzdaten einer NMC 622/Graphit-Zelle im 2 x 2 cm²-Format in unterschiedlichen Alterungsstadien a) Nyquist-Darstellung der Spektren; b) Kramers-Kronig Gültigkeitstest; c) Berechnete DRT-Spektren.

der Zellalterung stieg die Gesamtimpedanz (Summe der Halbkreise) der Zelle im Bereich zwischen Zyklus 30 und Zyklus 60 erkennbar an (Abbildung 8(a)). Die einzelnen Halbkreise sind stark verzerrt, was darauf hindeutet, dass hier eine Überlagerung verschiedener Prozesse mit ähnlichen Zeitkonstanten stattgefunden hat. Folglich war die Nyquist-Darstellung von Impedanzdaten nicht geeignet, um exakte Aussagen darüber treffen zu können, welche Mechanismen der Degradation zugrunde liegen.

Eine Analyseverfahren die im Rahmen von PostData eingesetzt wurde, um detailliertere Informationen über die zugrundeliegenden Alterungsprozesse gewinnen zu können, ist die DRT-Analyse (*Gleichung 1*), die als eine Transformation der Impedanzdaten von der Fourier-Ebene in die Zeitebene verstanden werden kann.

$$Z(\omega) = R_0 + Z_{pol}(\omega) = R_0 + R_{pol} \int_0^{\infty} \frac{\gamma(\tau)}{1+j\omega\tau} d\tau, \quad (1)$$

mit $\int_0^{\infty} \gamma(\tau) d\tau = 1$ und

R_0 = Ohm'scher Widerstand
 Z_{pol} = Polarisationsanteil der Impedanz
 R_{pol} = Polarisationswiderstand
 $\gamma(\tau)$ = Verteilungsfunktion der Relaxationszeiten

Im Gegensatz zur Nyquist-Darstellung werden im DRT-Spektrum 5 Peaks sichtbar, die jeweils ein R-C-Glied repräsentieren, wobei der Parameter γ als Widerstand interpretiert werden kann (Abbildung 8(c)). Anhand ihrer zugehörigen Frequenzbereiche können die Peaks spezifischen Prozessen in der Zelle zugeordnet werden, wobei die zeitliche Veränderung der Peakintensität sowie ihre Verschiebung entlang der x-Achse Rückschlüsse auf die Zellalterung zulässt (wird nachfolgend am Beispiel von NMC111/Graphit-Pouch-Zellen im 9,8 x 11,5 cm²-Format genau beschrieben und erläutert).

Hierbei ist erkennbar, dass die Spektren im Ohm'schen Frequenzbereich (bei ca. 10⁴ Hz) die höchsten Widerstände aufweisen, wobei die entsprechenden Peakmaxima mit steigender Zyklenzahl zunehmen (ca. 12 bis 14 Ω). Im Anodenbereich (ca. 10²-10³ Hz) verschieben sich die Peaks zu höheren Frequenzen (schnellere Reaktionen) und weisen eine maximale Intensität von ca. 3 Ω auf. Die Widerstände der Kathodenpeaks (ca. 10⁰-10¹ Hz) liegen dagegen bei etwa 0.5 Ω und verändern sich mit zunehmender Zyklenzahl nur geringfügig. Folglich wurde angenommen, dass die

Zellalterung in diesem Fall überwiegend auf die Elektrolytzersetzung und den damit verbundenen Anstieg des Ohm'schen Widerstands zurückzuführen war. Im Rahmen der Voruntersuchungen konnte somit gezeigt werden, dass die Auswertung von Impedanzdaten mittels DRT-Analyse Informationen darüber liefern kann, welche Degradationseffekte das Alterungsverhalten von Batteriezellen beeinflussen und dominieren.

Nachdem die EIS-Voruntersuchungen an den kleinformatischen Testzellen erfolgreich abgeschlossen waren, wurde am IFAM eine umfassende Alterungsdiagnostik an NMC111/Graphit-Pouch-Zellen im 9,8 x 11,5 cm²-Format durchgeführt. Dabei wurden zunächst ausschließlich State-of-the-Art (SoA)-Zellen ohne integrierte Sensorik untersucht.

Zur forcierten Zellalterung wurden die Zellen mit einer C-Rate von 1 C zyklisiert, wobei in zuvor festgelegten Intervallen Checkup-Tests durchlaufen wurden, in denen der Zustand der Batteriezellen mithilfe der in SP 2 beschriebenen Messmethoden untersucht wurde.

In Abbildung 9 ist der zyklenabhängige SoH-Verlauf von drei ausgewählten Laborzellen über 300 Zyklen dargestellt. Dieser wurde aus den Daten, die während des Entladevorgangs bei 0.05 C (Schritt 1: SoH-Bestimmung) aufgenommen wurden, berechnet. Während für Zelle 1 innerhalb des beobachteten Untersuchungszeitraums der größte Kapazitätsrückgang zu verzeichnen war (ca. 86% SoH), lag der SoH für Zelle 2 nach 300 Zyklen noch bei ca. 93%. Im Gegensatz dazu, wurde für Zelle 3 ein SoH von ca. 89% ermittelt.

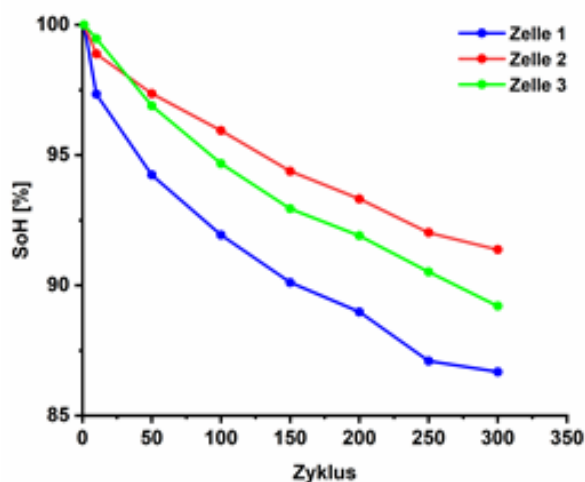


Abbildung 9: Zyklenabhängiger SoH-Verlauf der untersuchten NMC111/Graphit-Pouch-Zellen im 9,8 x 11,5 cm²-Format.

Neben der SoH-Bestimmung wurden die Zellen während der Checkup-Prozedur mithilfe von EIS (Schritt 3 → SP 2) untersucht. Abbildung 10 zeigt die Nyquist-Darstellung der Impedanzdaten, die bei 50% SoC nach 50 bzw. 300 Lastzyklen für die verschiedenen Laborzellen gemessen wurden.

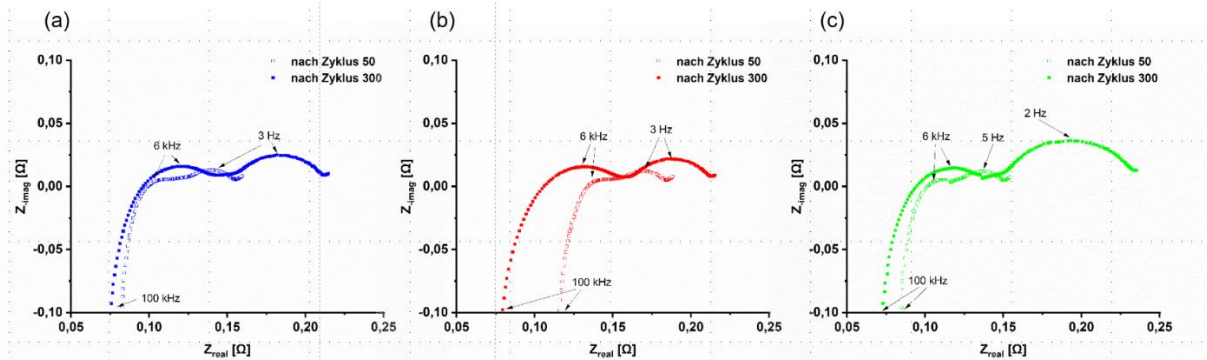


Abbildung 10: Impedanzspektren die bei 50% SoC nach 50 bzw. 300 Lastzyklen für die NMC111/Graphit-Pouch-Zellen 1 (a), 2 (b) und 3 (c) detektiert wurden.

Trotz der in Abbildung 9 beobachteten Unterschiede im SoH-Verlauf, sind die Nyquist-Spektren für die unterschiedlichen Zellen nahezu identisch und folgen mit zunehmender Zyklenzahl charakteristischen Trends. Alle Spektren weisen in einem Frequenzbereich zwischen 1 MHz und ca. 20 kHz ein stark induktives Verhalten auf. Ab 20 kHz bis ca. 400 Hz ist ein erster Halbkreis mit einem Maximum bei etwa 6 kHz erkennbar. Auf diesen folgt im niedrigen Frequenzbereich ein zweiter, größerer Halbkreis mit einem Maximum bei ca. 3 Hz. Mit steigender Zyklenzahl nimmt die Impedanz der Zellen drastisch zu, wobei kein direkter Zusammenhang zwischen dem Impedanzanstieg und der Abnahme des SoH der Zellen erkennbar war (Abbildung 11).

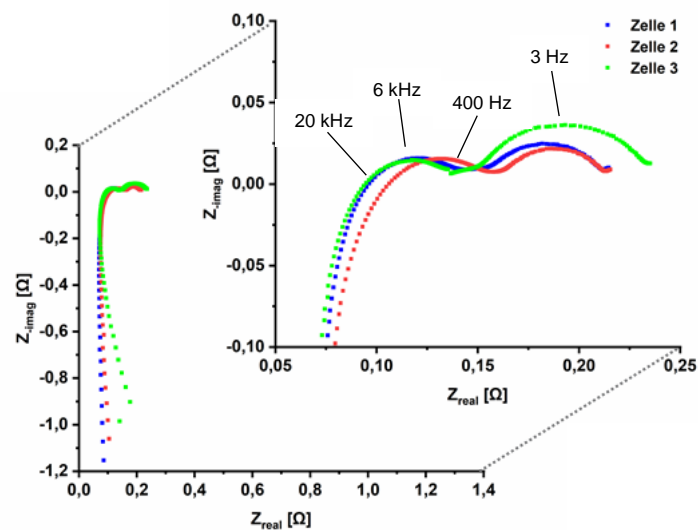


Abbildung 11: Impedanzspektren, die nach 300 Lastzyklen (1 C) bei 50% SoC für die unterschiedlichen NMC111/Graphit-Pouch-Zellen gemessen wurden.

Während für Zelle 1 mit zunehmender Zyklenzahl die stärkste Kapazitätsabnahme zu beobachten war, wies Zelle 1 nach 300 Zyklen ein nahezu identisches Impedanzverhalten auf wie Zelle 2, für die die geringste Kapazitätsabnahme verzeichnet wurde. Im Gegensatz dazu war die Impedanz von Zelle 3 bei einem moderaten Kapazitätsverlust am höchsten.

Folglich lässt sich sagen, dass eine alleinige Betrachtung des SoH-Verlaufs und der Zellimpedanz zwar Rückschlüsse auf das übergeordnete Alterungsverhalten der Zelle zulässt, allerdings liefern die obengenannten Methoden noch keine eindeutigen Erkenntnisse über die dominierenden Degradationsmechanismen und deren Zuordnung zu einzelnen Batteriezellkomponenten.

In Abbildung 12(a) sind die Nyquist-Spektren dargestellt, die für Zelle 2 in den Checkup-Tests nach unterschiedlichen Lastzyklenzahlen detektiert wurden. Die daraus berechneten DRT-Spektren (Abbildung 12(b)) zeigen im niedrigen Frequenzbereich einen Widerstand γ_{P1} , der auf die in der Zelle stattfindenden Transportprozesse zurückgeführt wurde. Im Frequenzbereich zwischen 1 Hz und wenigen hundert Hz werden Ladungstransferprozesse an Kathode und Anode sichtbar (γ_{P2} und γ_{P3}). Weiterhin wurde der Widerstand γ_{P4} der SEI-Bildung an der Anode zugeordnet. Im hohen Frequenzbereich zeigen die Spektren einen Ohm'schen Widerstand (γ_{P1}), der neben dem Elektrolytwiderstand, auch die Widerstände an den Stromableitern sowie weitere Kontaktwiderstände miteinschließt.

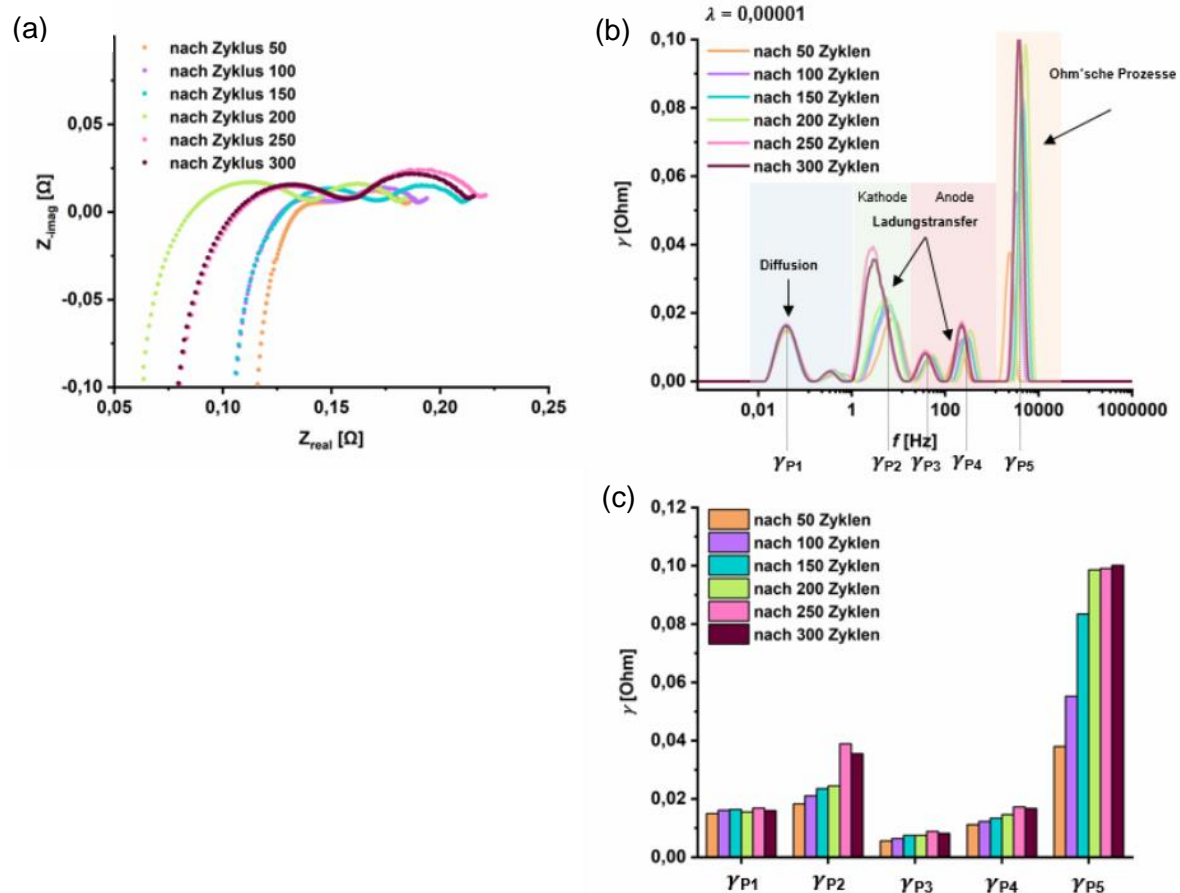


Abbildung 12: (a) Impedanzspektren, die nach unterschiedlichen Zyklenzahlen (1 C) bei 50% SoC an Zelle 2 (NMC111/Graphit) gemessen wurden; (b) zugehörige DRT-Spektren; (c) Veränderung der γ -Werte mit zunehmender Zyklenzahl.

Abbildung 12(c) bildet die zeitliche Entwicklung der für die unterschiedlichen Zyklen berechneten γ -Werte (Peak-Maxima) ab. Hierbei ist erkennbar, dass γ_{P1} über den gesamten Messzeitraum nahezu konstant bleibt. Folglich schien die Zellalterung keinen wesentlichen Einfluss auf das Diffusionsverhalten in der Zelle zu haben. Der Peak γ_{P2} wächst mit steigender Zyklenzahl an, wobei nach 250 Zyklen ein sprunghafter Anstieg erkennbar ist, der vermuten lässt, dass hier eine merkliche Degradation des Kathodenmaterials stattgefunden hat (Verlust von Kathodenaktivmaterial, LACM). Die Widerstände γ_{P3} und γ_{P4} , die durch Anodenprozesse dominiert werden, weisen einen ähnlichen Trend auf und nehmen mit fortschreitender Zellalterung kontinuierlich zu. Im quantitativen Vergleich sind die Werte von γ_{P3} und γ_{P4} jedoch kleiner als die von γ_{P2} , weshalb vermutet wurde, dass der Verlust von Anodenaktivmaterial (LAAM) die Zellalterung nicht hauptursächlich beeinflusst. Im Gegensatz dazu ist γ_{P5} nach 50 Zyklen mehr als dreimal so groß wie γ_{P2} und wächst mit steigender Zyklenzahl

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

drastisch an, was insbesondere auf die Elektrolytzersetzung an der Elektrodenoberfläche und den damit verbundenen Verlust von Lithiuminventar (LLI) zurückgeführt wurde.

Um die Ergebnisse der DRT-Messungen zu validieren, wurde der in der Checkup-Sequenz bei niedrigen C-Raten aufgenommene Entladezyklus (Schritt 1: SoH-Bestimmung) zur Untersuchung der Zellen mithilfe von DVA und ICA herangezogen. Abbildung 13(a) zeigt das Entladeprofil von Zelle 2 in unterschiedlichen Alterungsstadien. Die davon abgeleiteten DVA-Spektren (Abbildung 13(b), Auftragung von dU/dQ gegen C) resultieren aus einer Überlagerung von Peaks, die auf Phasenübergänge im Anodenmaterial zurückzuführen sind, mit dem Gradienten der gesamten Entladekurve, der durch Reduktionsvorgänge an der Kathode beeinflusst wird. Die während der Deinterkalation auftretenden Phasenübergänge im Anodenmaterial erzeugen Stufen in der Spannungskurve, die im DVA-Spektrum in Form von charakteristischen Peaks erkennbar werden.

Mit zunehmender Zyklenzahl sind charakteristische Veränderungen der DVA-Spektren zu beobachten, die genauer betrachtet wurden, um das Alterungsverhalten der Zellen zu analysieren. Dabei wurden 4 spezifische Merkmale im Spektrum identifiziert, deren Veränderung mit zunehmender Zyklenzahl mit der Zellalterung korreliert:

- a. Menge an Kapazität ΔQ_1 , die zwischen 100% SoC und dem zentralen Anodenpeak (Stelle an der die Anode zu 50% delithiiert ist) von der Zelle bereitgestellt wird.
- b. Menge an Kapazität ΔQ_2 , die von dem Zeitpunkt der 50%igen Anoden-Delithiierung bis zur vollständigen Entladung der Zelle freigesetzt wird.
- c. Gesamtkapazität $\Delta Q_1 + \Delta Q_2$, die zwischen 100% und 0% SoC abgegeben wird.
- d. Kapazitätsmenge ΔQ_3 , die zwischen den Anodenpeaks entladen wird.

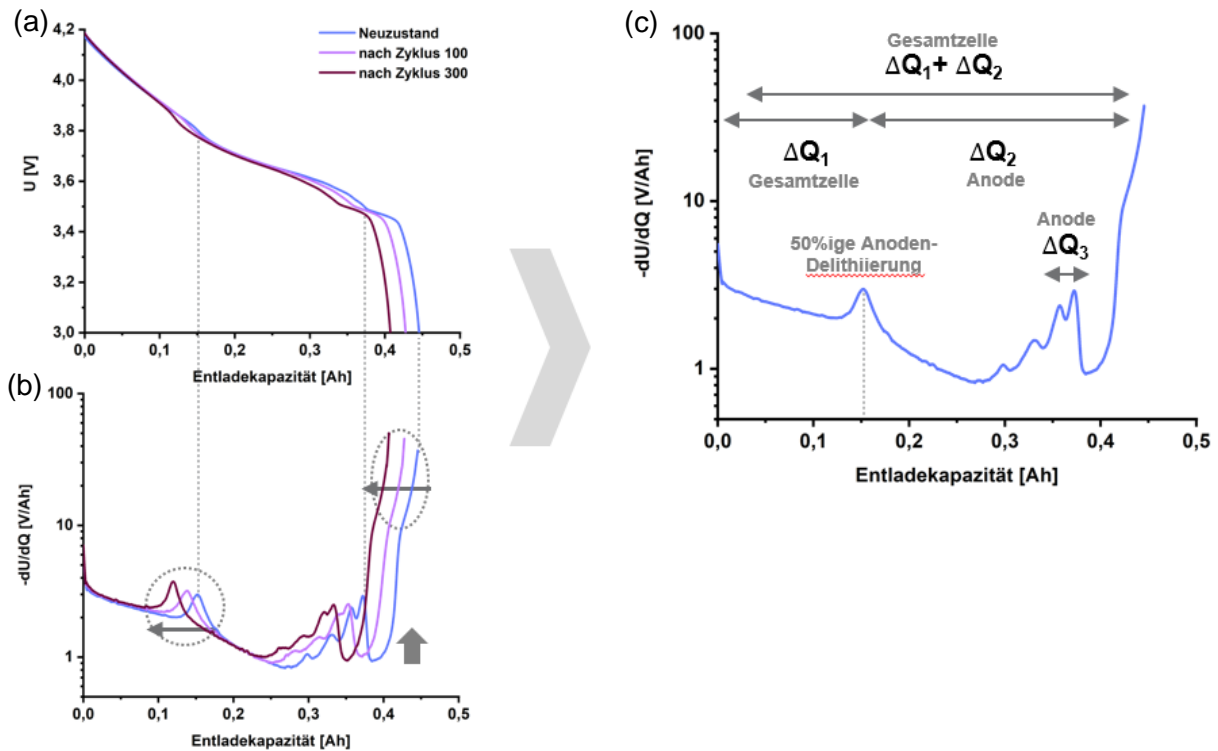


Abbildung 13: (a) Entladeprofil von Zelle 2 in unterschiedlichen Alterungsstadien; (b) von den Entladekurven abgeleitete DVA-Spektren; (c) charakteristische Merkmale im DVA-Spektrum.

Während die Merkmale ΔQ_2 und ΔQ_3 hauptsächlich auf charakteristische Anodenprozesse zurückzuführen sind, werden ΔQ_1 und $\Delta Q_1 + \Delta Q_2$ sowohl durch kathoden- als auch durch anodenseitige Reaktionen beeinflusst. Wie im unten abgebildeten Säulendiagramm zu erkennen ist, kam es im Laufe der Zyklisierung zu einer Verringerung der Gesamtkapazität $\Delta Q_1 + \Delta Q_2$ der Zelle (Abbildung 14). Da die charakteristischen Anodenmerkmale ΔQ_2 und ΔQ_3 nur geringfügig abnehmen, wurde angenommen, dass der Verlust von Aktivmaterial an der Anode (LAAM) keinen entscheidenden Einfluss auf die Gesamalterung der Zelle hat. Gleichzeitig ist eine Verringerung von ΔQ_1 zu beobachten, die eine ähnliche Intensität aufweist, wie die Abnahme der Gesamtkapazität und auf eine Veränderung des Gesamtsystems hindeutete (z.B. Shift im Elektrodenbalancing), die wahrscheinlich auf die Abnahme der Gesamtkapazität durch den Verlust von Lithiuminventar (LLI) zurückgeführt werden kann, was in Einklang mit den Ergebnissen der DRT-Analysen steht.

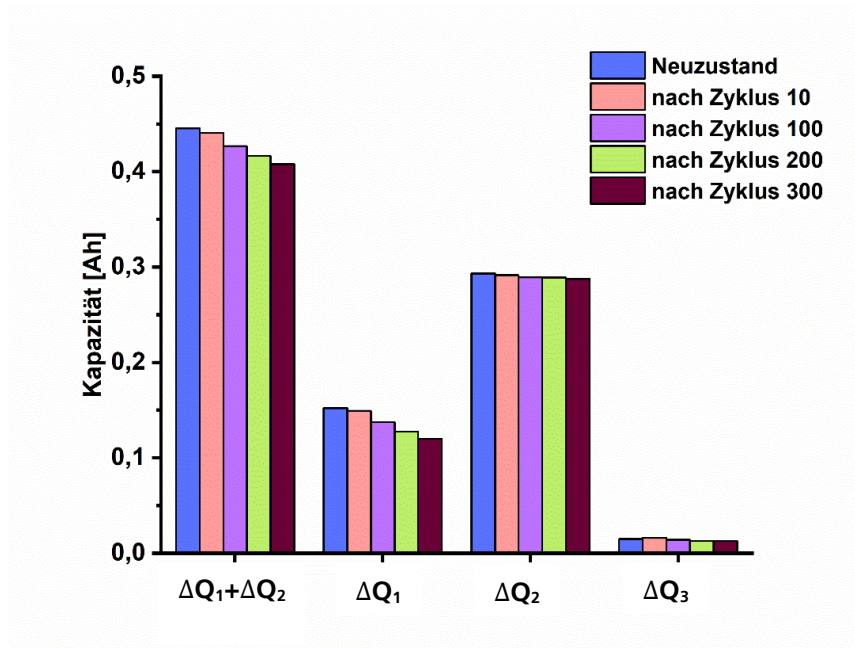


Abbildung 14: Veränderung der für Zelle 2 im DVA-Spektrum detektierten charakteristischen Merkmale mit zunehmender Zyklenzahl.

Während jeder Phasenübergang in der Entladekurve (Abbildung 15(a)) einen Peak im DVA-Spektrum (Abbildung 15(b)) erzeugt, tritt im ICA-Spektrum jedes Plateau, d.h. jede Phase des elektrochemischen Systems in Form eines Peaks in Erscheinung (Abbildung 15(c)), woraus sich Interkalationspotentiale ablesen lassen. Die in dargestellten ICA-Spektren, die aus der Auftragung von dQ/dU gegen U resultieren, zeigen einen dominanten zentralen Peak bei ca. 3.7 V, einen scharfen Peak mit hoher Amplitude bei 3.5 V und einen undefinierten, flacheren Peak bei 3.9 V. Anders als bei der DVA-Analyse, können mithilfe von ICA auch kathodenseitige Phasenübergänge gut sichtbar gemacht werden. Insbesondere der zentrale Peak, dessen Maximum bei ca. 3,7 V liegt, rührt von einem charakteristischen Phasenübergang im Kathoden-Aktivmaterial her und markiert eine Veränderung der NMC-Gitterstruktur. Der Peakshift wurde dabei auf einen Verlust von Kathodenaktivmaterial (LACM) zurückgeführt, was die Ergebnisse der DRT-Analysen unterstreicht. Wie bereits anhand der DRT- und DVA-Analysen abgeleitet wurde, bekräftigte auch die ICA-Analyse die Vermutung, dass die Zellalterung durch LLI dominiert wurde, was sich in den ICA-Spektren durch eine starke Abnahme der Fläche des zentralen Peaks mit zunehmender Zyklenzahl bemerkbar macht.

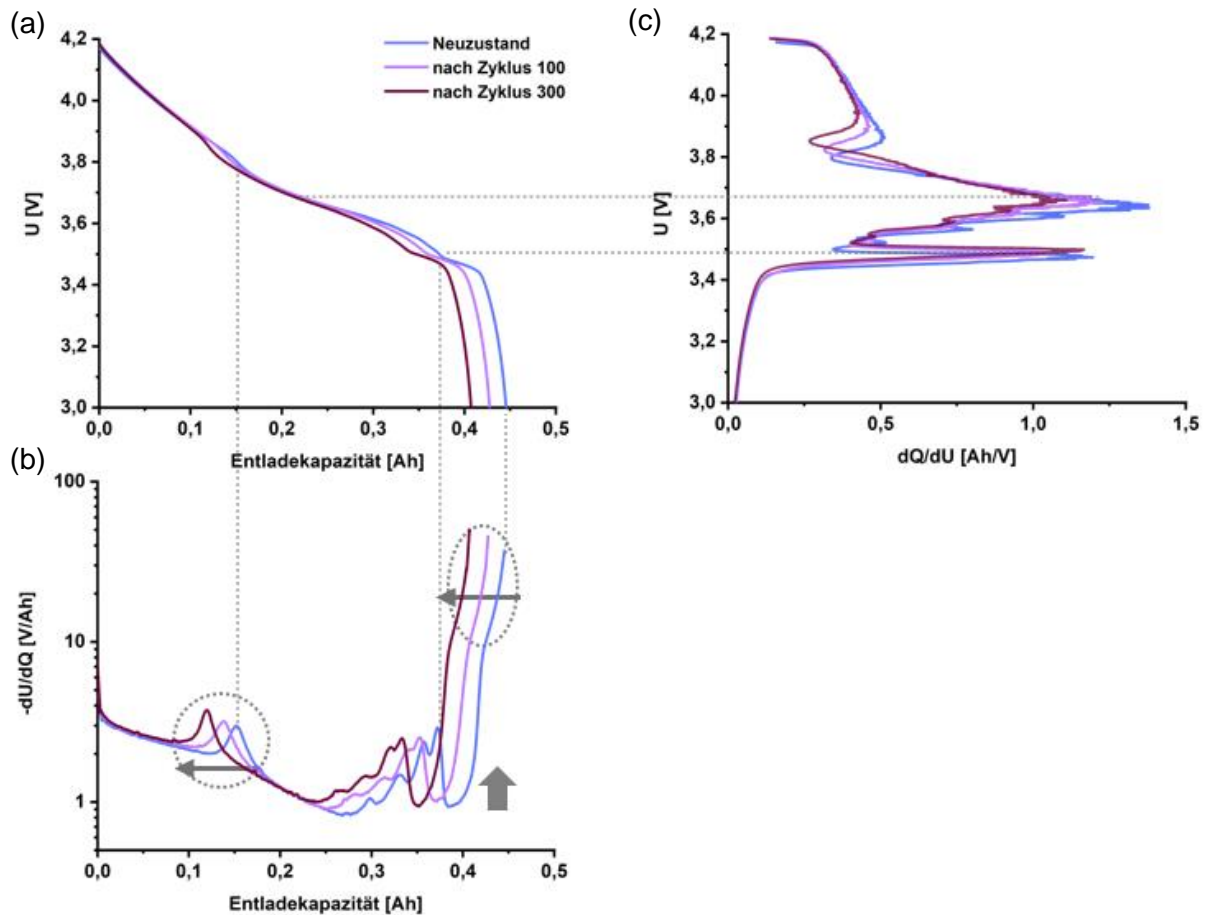


Abbildung 15: (a) Entladeprofil von Zelle 2 in unterschiedlichen Alterungsstadien; (b) abgeleitete DVA-Spektren; (c) abgeleitete ICA-Spektren.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass mithilfe von DRT-, DVA-, und ICA-Analysen eine gezielte Zuordnung der in der Zelle auftretenden Schädigungseffekte zu einzelnen Batteriezellkomponenten sowie eine quantitative Betrachtung der verschiedenen Alterungseinflüsse ermöglicht wurde, wodurch insbesondere der **LLI** und der **LACM** als dominierende Alterungseffekte identifiziert werden konnten.

Neben den Alterungsuntersuchungen an kleinformatischen $2 \times 2 \text{ cm}^2$ -NMC 622/Graphit- und $9,8 \times 11,5 \text{ cm}^2$ -NMC 111/Graphit-Pouch-Zellen ohne integrierte Sensorik, wurden am IFAM auch Messungen an sensorintegrierten NMC 622/Graphit-Pouch-Zellen im $9,8 \times 11,5 \text{ cm}^2$ -Format (Zellen 1 + 2) sowie an baugleichen Referenzzellen ohne Sensorik (Zellen 3 + 4) erhoben. Zur forcierten Alterung wurden die Zellen mit der in SP 2 beschriebenen Testprozedur vermessen, die speziell an die höheren Flächenbelastungen der sensorintegrierten Zellen angepasst wurde. In Abbildung 16 ist der SoH-Verlauf, der für die vier Zellen im Rahmen der Checkup-Tests ermittelt wurde, dargestellt.

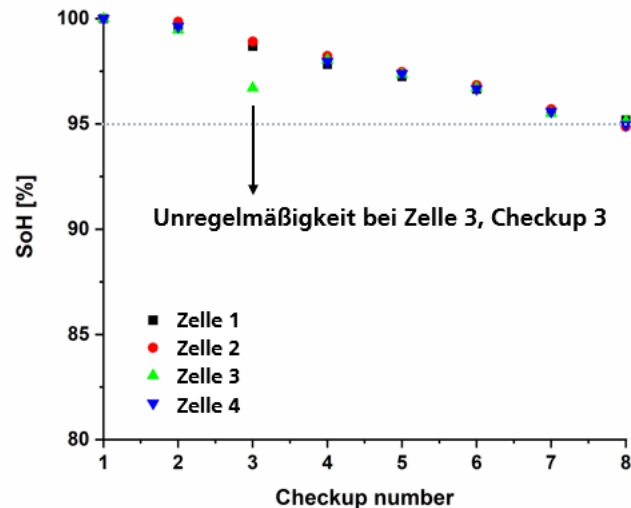


Abbildung 16: Zyklenabhängiger SoH-Verlauf der sensorintegrierten NMC622/Graphit-Pouch-Zellen im $9,8 \times 11,5 \text{ cm}^2$ -Format (Zellen 1 + 2) und baugleicher Referenzzellen ohne Sensorik (Zellen 3 + 4).

Hierbei ist zu erkennen, dass die SoH-Entwicklung für alle Zellen praktisch identisch war. Insbesondere ist auffällig, dass die SoH-Abnahme von ca. 5% nach insgesamt 230 Lastzyklen sehr gering war.

Der Vergleich der DVA-Spektren, die für Zelle 1 (mit integrierter Glasfaser) und Zelle 4 (ohne Sensorik) in unterschiedlichen Alterungsstadien abgeleitet wurden (Abbildung 17), bestätigt, dass sich die Integration von Glasfasern in das Anodenmaterial bei moderater Belastung nicht nachteilig auf die Lebensdauer auswirkt. Darüber hinaus konnte gezeigt werden, dass die veränderte Zellchemie und die Flächenbeladung keinen wesentlichen Einfluss auf das Alterungsverhalten der Zellen hatten. Auch in diesem Fall konnte LLI als dominanter Alterungsprozess identifiziert werden.

Die Ergebnisse der Charakterisierung der sensorintegrierten Zellen und die Zusammenführung der elektrischen und optischen Messdaten werden im AP 3.2 adressiert und umfassend erläutert.

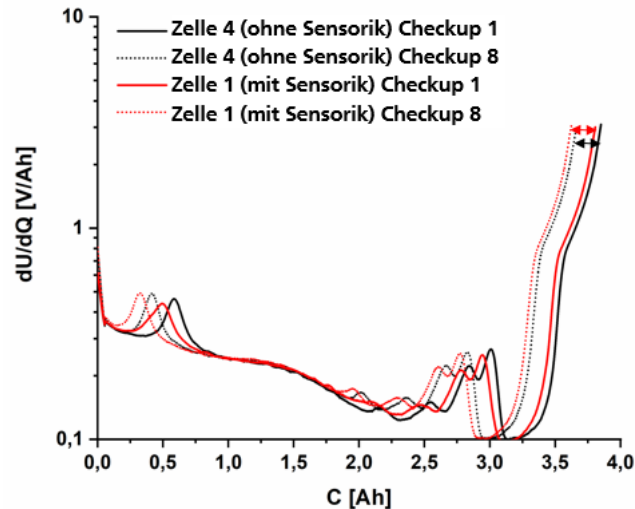


Abbildung 17: Vergleich von DVA-Spektren, die für Zelle 1 (mit integrierter Glasfaser) und Zelle 4 (Referenzzelle ohne Sensorik) in unterschiedlichen Alterungsstadien abgeleitet wurden.

UAP 2.4: Post-mortem-Analyse

Zur Validierung der elektrischen Messergebnisse wurden am IFAM im UAP 2.4 post-mortem Analysen an degradierten, teils sensorintegrierten, Zellen durchgeführt, wobei die Zellen in unterschiedlichen Alterungsstadien (d.h. nach unterschiedlichen Zyklenzahlen) untersucht wurden. In Abbildung 18 sind Fotoaufnahmen einer degradierten Anode für eine exemplarisch ausgewählte NMC 622 Zelle mit integrierter Glasfaser gezeigt, die insgesamt 300 Zyklen durchlaufen hat. Der aus den Checkup-Daten ermittelte SoH der Zelle lag zum Zeitpunkt der Öffnung bei 91%.

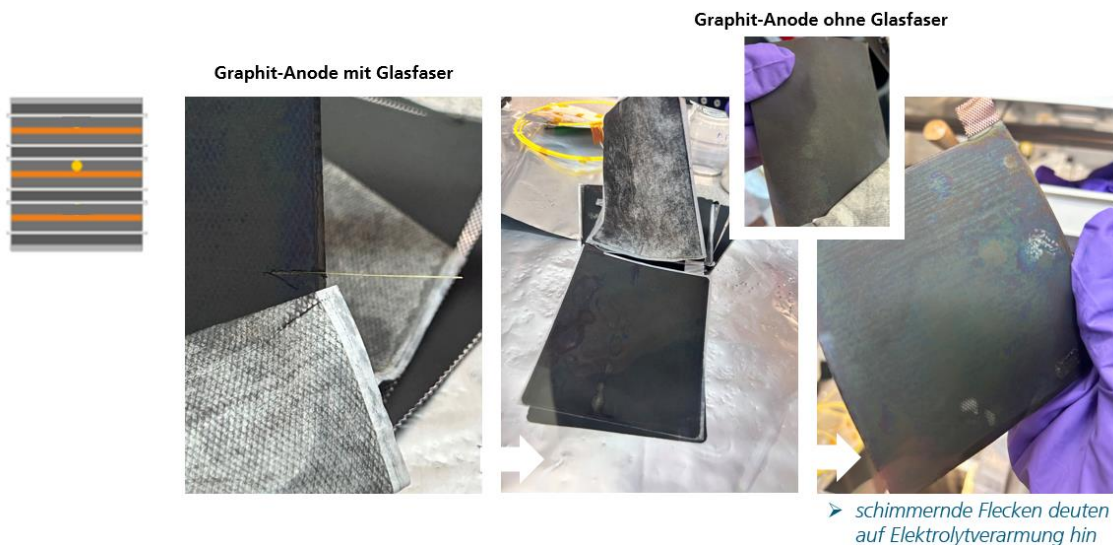


Abbildung 18: Fotoaufnahmen einer degradierten Graphit-Anode für eine exemplarisch ausgewählte NMC 622 Zelle mit integrierter Glasfaser bei SoH = 91%.

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

Das untersuchte Anodenmaterial wies keine offensichtlichen Defektstellen auf, allerdings waren auf der Graphitoberfläche schimmernde Flecken zu sehen, die auf eine Verarmung des Elektrolyten hindeuteten. Ähnliche Effekte konnten auch am Anodenmaterial einer NMC 111 Zelle ohne integrierte Glasfaser beobachtet werden (siehe Abbildung 18, Inlay). Die in die Graphit-Elektrode eingebettete Glasfaser wies ebenfalls keine erkennbaren Degradationseffekte auf (siehe UAP 1.4).

Im Gegensatz dazu waren auf der NMC-Kathode (Abbildung 19) kleinere Defektstellen zu sehen, die auf den Verlust von Elektrodenmaterial zurückgeführt wurden und in der Abbildung rot markiert sind. Weiterhin konnten am Rand der Kathode dunkle Verfärbungen (in gelb markiert) beobachtet werden, die ebenfalls auf eine Alterung des Elektrodenmaterials hindeuten.

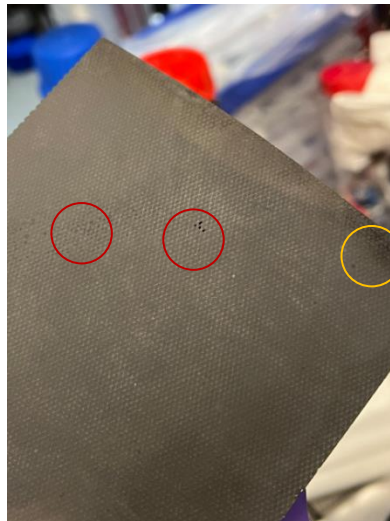


Abbildung 19: Fotoaufnahmen der gealterten NMC-Kathode von Zelle 2.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass eine zuverlässige Identifizierung der zugrundeliegenden Alterungsprozesse durch die bloße Betrachtung der Materialien in einem frühen Alterungsstadium nicht möglich war. Dennoch lieferten die Fotoaufnahmen Hinweise auf das Degradationsverhalten der Zelle. Insbesondere ist hierbei anzumerken, dass die Integration von Glasfasern in das Anodenmaterial keine beschleunigte Degradation der Zellen verursachte.

UAP 3.1: Implementierung der Datenbank und –verwaltung

Am IFAM wurde im Rahmen des UAP 3.1 ein eigenes DBS basierend auf der Zeitreihendatenbank (engl. *Time Series Database*, TSDB) **Influx DB** und dem objektrelationalen Datenbankmanagementsystem (DBMS) **PostgreSQL** aufgebaut. In einer TSDB wird jeder Messwert mit einem Zeitstempel verknüpft, wobei die in Influx DB hinterlegten Daten über Metadaten-Tags mit dem PostgreSQL-System verknüpft wurden. Im Gegensatz zur TSDB, die eine flexible Struktur aufweist, werden die Metadaten in PostgreSQL in Form von Tabellen organisiert, wobei jede Zeile in der Tabelle einem Datensatz mit einer eindeutigen ID entspricht. Die Spalten der Tabelle enthalten sogenannte Attribute (Eigenschaften) der Daten. Üblicherweise enthält jeder Datensatz einen Wert für jedes Attribut. Um die Daten auch visuell darstellen zu können, wurde zusätzlich die open-Source-Anwendung **Grafana** eingesetzt, die die grafische Darstellung von Daten aus InfluxDB und PostgreSQL ermöglicht.

Die verschiedenen Software-Tools wurden über ein Python-Skript gesteuert, wodurch die Entwicklung individuell angepasster Funktionen zum Datenimport, zur Einrichtung von Suchfunktionen, sowie zur Erstellung von Workflows, implementiert werden konnten.

In Abbildung 20 ist schematisch dargestellt, wie die im Projekt generierten Forschungsdaten mit den vorgestellten Software-Tools zum Datenmanagement verknüpft wurden, um die Datenbank-Basisstruktur technisch zu realisieren.

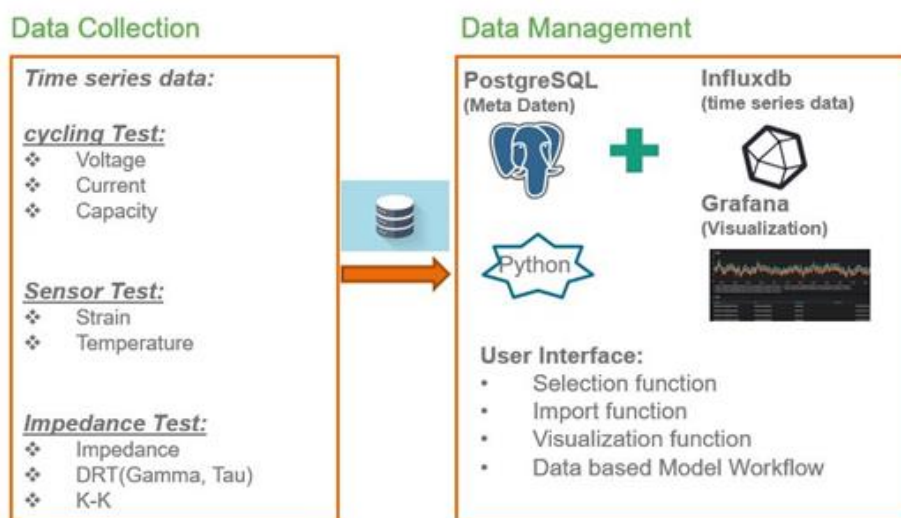


Abbildung 20: Schematische Darstellung der technischen Umsetzung der Datenbank-Basisstruktur.

- Mit der erfolgreichen technischen Umsetzung der Datenbank-Basisstruktur hat das IFAM im Projektmonat 12 den Meilenstein ‚UAP 3.1-U-MS 1: Datenbank mit Basisstruktur implementiert‘ erreicht.

In Abbildung 21 ist ein Ausschnitt der Benutzeroberfläche der Influx DB-Datenbank dargestellt. Dabei sind die verschiedenen Filter-Tags zu erkennen, die für die Suchabfrage herangezogen werden können.

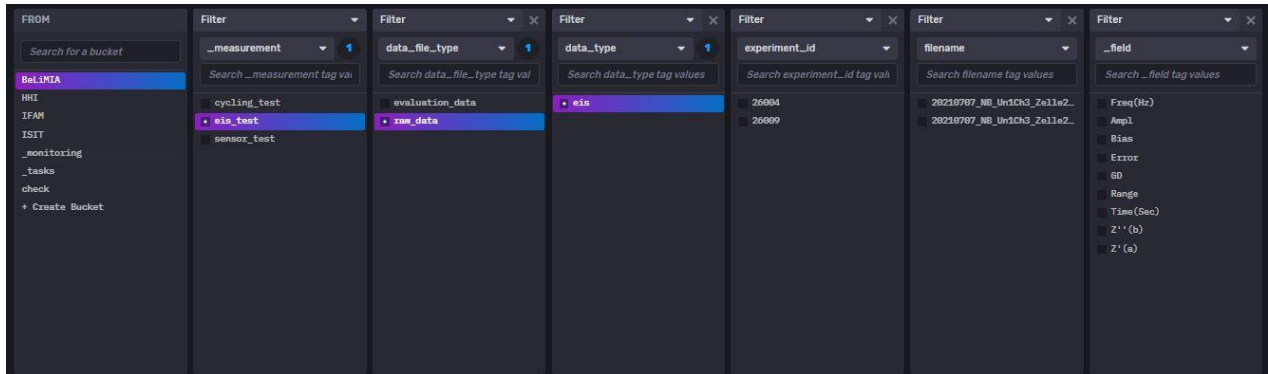


Abbildung 21: Ausschnitt der Benutzeroberfläche der Influx DB-Datenbank.

Die im Vorhaben generierten Daten wurden in das IFAM-DBS eingepflegt, automatisiert verarbeitet und visualisiert. Nachfolgend sind exemplarische Impedanzdaten-Plots gezeigt, die über die Grafana-Benutzeroberfläche erstellt wurden (Abbildung 22).

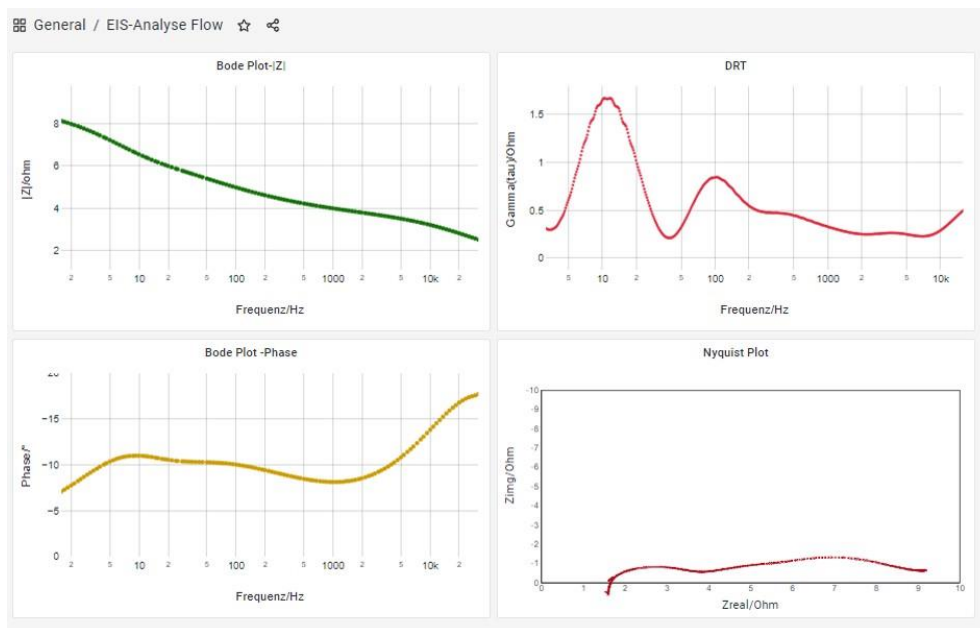


Abbildung 22: Visualisierung von Impedanzdaten über die Grafana-Benutzeroberfläche.

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

Obwohl durch die Realisierung des IFAM-DBS eine deutliche Steigerung des Knowhows im Bereich des Forschungsdatenmanagements und der Software-Entwicklung erreicht werden konnte, wurde im Verlauf des Vorhabens erkennbar, dass die Erstellung solcher Individuallösungen nicht zu einer schnellen Effizienzsteigerung im täglichen Laborbetrieb beitragen kann.

Im Bereich des Forschungsdatenmanagements wurden bereits zahlreiche Software-Lösungen entwickelt, die open-source oder kommerziell erhältlich sind, wie z.B. das von der ETH Zürich entwickelte, freizugängliche Datenverwaltungssystem openBIS (*open Biology Information System*), das ursprünglich für die Verwaltung und Verarbeitung von Forschungsdaten im Bereich Biologie entwickelt wurde und mittlerweile in vielfältigen Fachbereichen eingesetzt wird. Im Rahmen der Projektlaufzeit wurde am IFAM eine openBIS-Instanz installiert, die im Gegensatz zu dem IFAM-DBS über Schnittstellen verfügt, die eine direkte Kommunikation zwischen Proben, Messgeräten und unterschiedlichen Datenbanken ermöglicht. Parallel dazu wurde am IFAM auch eine Kadi4Mat (*Karlsruhe Data Infrastructure for Materials Science*)-Instanz eingerichtet. Dabei handelt es sich ebenfalls um eine open-source Software zum Datenmanagement, die im Rahmen der BattNutzungs-Cluster-Aktivitäten zum Datenaustausch verwendet wurde. Um eine Einschätzung darüber treffen zu können, welches der genannten Systeme am besten für die Speicherung, Verwaltung, den Austausch und die effiziente und nachhaltige Verwertung der in BeLiMIA generierten Daten geeignet ist, wurde am IFAM eine vergleichende Betrachtung der verschiedenen Software-Angebote vorgenommen.

Zusätzlich zu den bereits genannten Tools wurde auch die kommerziell erhältliche Software ‚Batalyse‘ betrachtet, die speziell zur Verwaltung und Analyse von Batterie-bezogenen Daten entwickelt wurde. Die generellen Vor- und Nachteile von open-source vs. kommerziellen DBMS sind in Tabelle 5 gegenübergestellt.

Open-Source-Lösungen sind oft kostenlos verfügbar oder erfordern nur geringe Lizenzgebühren im Vergleich zu kommerziellen Lösungen, die oft teuer sind. Insgesamt bieten freie Software-Lösungen eine hohe Flexibilität im Hinblick auf die Anpassung der Datenbankstruktur an die Nutzer-spezifischen Bedürfnisse, da der Quellcode anpassbar und erweiterbar ist.

Tabelle 5: Vor- und Nachteile von open-source und kommerziellen DBMS.

<u>open-source</u>	<u>kommerziell</u>
<p>Vorteile</p> <ul style="list-style-type: none"> ✓ hohe Anpassungsfähigkeit/Flexibilität ✓ Implementierung eigener Schnittstellen/Funktionen/Skripte in der Regel möglich ✓ meist hohe Kompatibilität mit anderen Datenbanksystemen ✓ häufig umfassende Dokumentation verfügbar <p>Nachteile</p> <ul style="list-style-type: none"> – Datenbankstruktur muss eigenständig entwickelt und technisch realisiert werden – Nutzung erfordert umfassende Kenntnisse im Bereich Softwareentwicklung und Datenmanagement – umfassende IT-Administration erforderlich – bislang keine Batterie-spezifische Lösung verfügbar <p>➤ Interessant für Softwareentwickler und die Umsetzung flexibel anpassbarer Datenbanklösungen</p>	<p>Vorteile</p> <ul style="list-style-type: none"> ✓ Keine Programmierkenntnisse erforderlich ✓ keine aufwendige interne IT-Administration erforderlich ✓ hohe Kompatibilität mit anderen DBs ✓ Einfache Nutzbarkeit ✓ Umfassender Service <p>Nachteile</p> <ul style="list-style-type: none"> – Implementierung neuer Schnittstellen/Funktionen ausschließlich durch den Anbieter möglich – teils hohe Beschaffungskosten – evtl. Risiko durch erforderliche Internetanbindung – Nicht immer mit anderen Systemen kompatibel <p>➤ Interessant für die schnelle, unkomplizierte Strukturierung, Verwaltung und Nutzbarmachung vorhandener Daten</p>

Sie sind zudem nicht an einen einzelnen Anbieter gebunden und in der Regel gut mit anderen Systemen kombinierbar. Da der Quellcode von freier Software öffentlich zugänglich ist, können Benutzer die Funktionsweise verstehen, Sicherheitslücken erkennen und beheben sowie unerwünschte Funktionen entfernen. Open-source-DBMS haben oft eine breite Community von Entwicklern und Benutzern, die dabei helfen, Probleme zu lösen, neue Funktionen zu entwickeln und Support zu bieten. Der größte Nachteil in der Nutzung von freier Software liegt jedoch in der hohen Komplexität. Die Anpassung und Wartung von Open-Source-Lösungen erfordert fortgeschrittene technische Kenntnisse und Ressourcen, die häufig seitens der Nutzer nicht bereitstellbar sind. Zudem gibt es in der Regel keine Garantien oder Service-Level-Vereinbarungen, die mit Open-Source-Software verbunden sind.

Im Gegensatz dazu bieten kommerzielle Lösungen oft Service-Level-Vereinbarungen (SLAs), die die Leistung, Verfügbarkeit und Sicherheit der Lösung garantieren sowie einen umfassenden Support durch den Anbieter, der üblicherweise auch Problembehebungen, Schulungen und Beratungsdienste durchführt. Zusätzlich stellen kommerzielle Lösungen häufig eine Vielzahl von integrierten Funktionen und Werkzeugen bereit, die speziell auf die Anforderungen des Kunden zugeschnitten sind. Kommerzielle Produkte sind meist einfacher zu implementieren, da sie weniger Anpassungen erfordern und eine umfassende Dokumentation und Unterstützung bieten. Darüber hinaus sind kommerzielle DBMS in der Regel mit nutzerfreundlichen Bedienoberflächen ausgestattet, die die Nutzung vereinfachen und keine Programmierkenntnisse erfordern. Nachteilig sind in diesem Fall jedoch häufig die hohen Kosten, die im Rahmen der Beschaffung und Nutzung anfallen, sowie eingeschränkte Anpassungsmöglichkeiten.

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

Neben dieser allgemeinen Gegenüberstellung, wurden die im Rahmen des Projektvorhabens entwickelten, bzw. bereits etablierten DBMS genauer betrachtet (Abbildung 23):

- openBIS ist eine open-source-Plattform für das Management wissenschaftlicher Informationen und Forschungsdaten. Es wurde entwickelt, um Daten aus verschiedenen Quellen zu integrieren und zu organisieren. openBIS besteht aus zwei grundlegenden Einheiten, einem elektronischen Laborbuch (ELN) und einem Laborinformationsmanagementsystem (LIMS). Es bietet so die Möglichkeit zur Dokumentation von Laborversuchen zur langfristigen Speicherung und Verarbeitung sämtlicher Forschungsdaten, wie z.B. Rohdaten, verarbeiteten Daten, analysierten Daten, Skripten, Jupyter Notebooks, und zur Inventarverwaltung (Erfassung von Laborproben, Materialien, etc.).
- Kadi4Mat ist eine Forschungsdatenmanagement-Plattform, die speziell für den Bereich Materialwissenschaften entwickelt wurde. Die Kernfunktionalitäten von Kadi4Mat umfassen die Verwaltung, Analyse und Visualisierung von Materialdaten, einschließlich experimenteller Daten, Simulationsergebnisse, Eigenschaften von Materialien, etc. Die Plattform bietet Funktionen zur Integration verschiedener Datenquellen, zur Zusammenarbeit zwischen Forschern und zur Veröffentlichung von Ergebnissen. In diesem Zusammenhang stellt KadiMat eine Datenbank, das sogenannte ‚Community Repository‘ bereit. Die Verarbeitung und Visualisierung der Daten erfolgt über ein ELN, das speziell auf die automatisierte Durchführung von Workflows zugeschnitten ist.

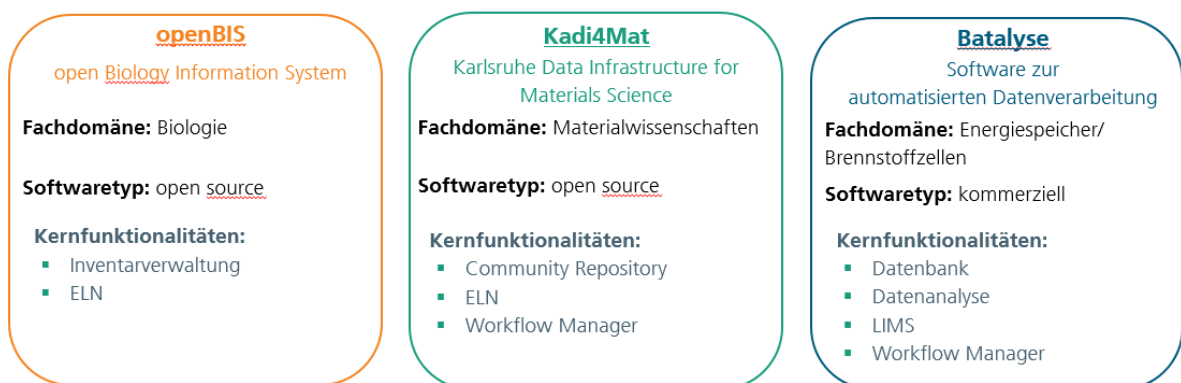


Abbildung 23: Gegenüberstellung von open-source und kommerziellen DBMS.

- Batalyse ist eine Datenmanagement- und Analyse-Software, die insbesondere für die Verwaltung und Verarbeitung von Batteriedaten entwickelt wurde. Batalyse besteht aus drei Software-Modulen, die unabhängig oder gemeinsam verwendbar sind. Die Kernfunktionalität von Batalyse liegt in der Zusammenführung, Speicherung und Kategorisierung von Daten und Metadaten mit dem ‚Collect‘-Modul. In Kombination mit dem ‚Data Analysis‘-Feature können Daten, die in Collect hinterlegt sind, automatisch analysiert und wieder in die Datenbank überführt werden. Zusätzlich bietet Batalyse das ‚Mind‘-Modul an, das als LIMS dient und zur automatisierten Verwaltung und Erfassung von Geräten, Chemikalien, usw. sowie zur Generierung von Workflows verwendet werden kann.

Aus technischer Sicht sind die verschiedenen Software-Angebote sehr ähnlich und bieten auch vergleichbare Funktionalitäten. Allerdings hängt der Umfang der bereits implementierten Funktionen entscheidend vom Entwicklungsstand des Produkts ab und ist zumeist auch stark vom fachlichen Hintergrund geprägt, für den das System ursprünglich entwickelt wurde. Weiterhin ist entscheidend, ob für den Nutzer eine schnelle und einfache Implementierung und Verwendung des DBMS im Vordergrund steht oder ob der Fokus auf der technischen Entwicklung einer individuellen Datenmanagement-Lösung liegt. Im letzteren Fall kann eine bereits erprobte open-source-Software ein geeignetes Framework zur Erstellung von Systemen mit spezifischeren Anforderungen darstellen. Insbesondere im Bereich der Batterieforschung, in dem die Vermeidung redundanter Messungen und eine Effizienzsteigerung in der Datenverarbeitung von großem Nutzen wäre, kann die Verwendung von kommerziellen Produkten, wie Batalyse jedoch einen größeren Mehrwert schaffen, ohne zusätzliche personelle Ressourcen oder ein spezifisches Knowhow zu erfordern.

UAP 3.2: Zusammenführung von optischen u. elektrischen Daten zur Alterungsbestimmung und Korrelation zum SOH

Im Arbeitspaket UAP 3.2 wurde am IFAM eine kombinatorische Analyse und vergleichende Betrachtung von Alterungsdaten vorgenommen, die mithilfe unterschiedlicher Mess- und Analysemethoden generiert wurden. Ein besonderer Fokus in diesem UAP lag in der Bewertung der Effizienz unterschiedlicher Mess- und

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

Analysemethoden hinsichtlich ihrer Fähigkeit, die in der Zelle stattfindenden Alterungsprozesse zu identifizieren und zu quantifizieren. Hierbei wurden die folgenden inhaltlichen Schwerpunkte adressiert:

1. *Auswertung von Impedanzdaten mit verschiedenen Analysemethoden*
2. *Quantifizierung von dominanten Alterungsprozessen mithilfe verschiedener elektrochemischer Test- und Analyseverfahren*
3. *Zusammenführung von elektrischen und optischen Messdaten*

Die verschiedenen Themen werden nachfolgend detailliert erläutert.

1. Auswertung von Impedanzdaten mit verschiedenen Analysemethoden

Zur kombinatorischen Analyse von Impedanzdaten wurde am IFAM eine vergleichende Betrachtung von alterungsrelevanten Parametern, die mithilfe von DRT-Analyse bzw. Ersatzschaltbildmodellierung (ECM) extrahiert wurden, vorgenommen. Dazu wurden EIS-Messungen, die an kleinformatischen NMC 622/Graphit-Pouch-Zellen in verschiedenen Alterungs- und Ladezuständen durchgeführt wurden, herangezogen (siehe UAP 2.1). Die entsprechenden Impedanzdaten sind in Abbildung 24(a) in Form von Nyquist-Plots dargestellt

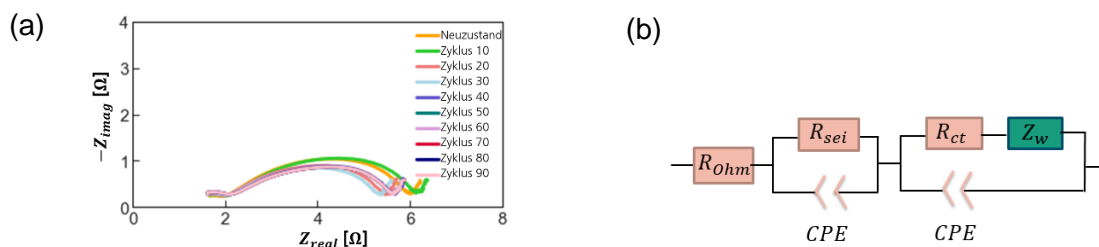


Abbildung 24: (a) Nach unterschiedlichen Zyklenzahlen an kleinformatischen NMC 622/Graphit-Pouch-Zellen gemessene EIS-Spektren (50% SoC); (b) Ersatzschaltbildmodell einer zwei-stufigen Reaktion, das zur Modellierung der Impedanzdaten herangezogen wurde.

Wie bereits in UAP 2.1 erläutert, deuten die Impedanzspektren, darauf hin, dass eine Überlagerung von mindestens zwei Prozessen mit ähnlichen Zeitkonstanten vorliegt, die in der Nyquist-Darstellung nicht eindeutig separiert werden können. Folglich wurde zur ECM der in Abbildung 24(b) gezeigte Schaltkreis verwendet, der eine zwei-stufige Reaktion repräsentiert. Die zeitliche Entwicklung der mithilfe von ECM extrahierten, normierten Parameter ist als Funktion des SoC in Abbildung 25 dargestellt.

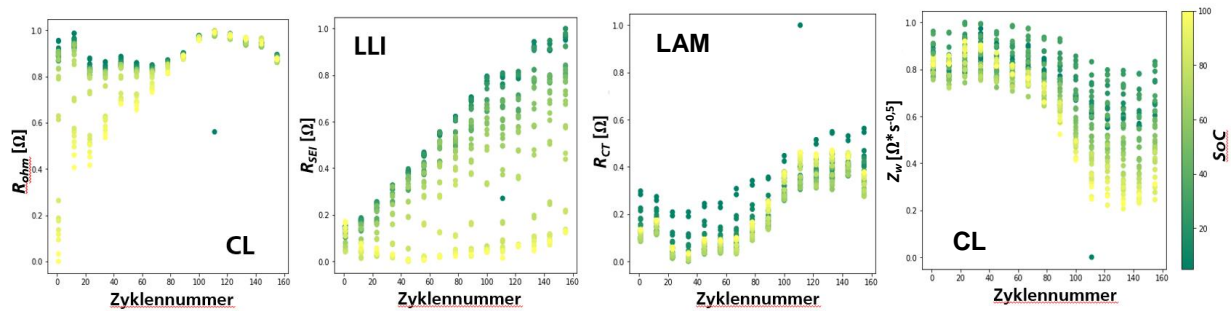


Abbildung 25: Zeitliche Entwicklung der mithilfe von ECM für unterschiedliche SoCs extrahierten, normierten Parameter und deren Zuordnung zu übergeordneten Alterungsprozessen.

Grundsätzlich kann eine Zunahme der verschiedenen Widerstände auf unterschiedliche Alterungsvorgänge in der Zelle hindeuten. Während ein Anstieg des Ohm'schen Widerstands R_{Ohm} insbesondere auf einen Leitfähigkeitsverlust des Elektrolyten (CL), bzw. den Verlust von aktivem Lithium zurückzuführen sein kann, wird eine Zunahme von R_{SEI} häufig durch LLI verursacht. Ein Anstieg des Ladungstransferwiderstands R_{CT} deutet dagegen auf einen Verlust von Aktivmaterial an Anode oder Kathode (LAM) hin, während eine Änderung des Diffusionsverhaltens ebenfalls durch CL begründet sein könnte.

Im Gegensatz zur ECM-Analyse konnten mittels DRT-Analyse (siehe UAP 2.1) insgesamt 5 Peaks identifiziert werden, die anhand ihrer zugehörigen Frequenzbereiche spezifischen Prozessen zugeordnet werden konnten. Somit lieferte die DRT-Analyse einen zusätzlichen Parameter, wodurch eine Separierung der Ladungstransferwiderstände von Anode und Kathode ermöglicht wurde. Zusätzlich ist anzumerken, dass die DRT-Analyse eine direkte Darstellung der Verteilung der Relaxationszeiten der verschiedenen Prozesse in der Zelle ermöglicht, ohne dass zuvor ein spezifisches Ersatzschaltbild definiert werden muss. Folglich kann mithilfe von DRT eine detailliertere und weniger mehrdeutige Analyse der EIS-Daten durchgeführt werden, was in einer präziseren Diagnose des Zustands und der Alterungsprozesse von Batteriezellen resultiert.

2. Quantifizierung von dominanten Alterungsprozessen mithilfe verschiedener elektrochemischer Test- und Analyseverfahren

In UAP 2.1 wurde das Degradationsverhalten von 9,8 x 11,5 cm²-NMC 111/Graphit-Pouch-Zellen ohne integrierte optische Sensorik untersucht. Um dominante Alterungsprozesse gezielt aufzudecken wurden Impedanzmessungen und DRT-Analysen durchgeführt, die mithilfe von ICA- und DVA-Analysen validiert wurden. Im Rahmen der Untersuchungen wurde der Verlust von Lithiuminventar (LLI) als dominanter Alterungsprozess identifiziert. Neben der Identifizierung übergeordneter Alterungsmechanismen hat sich das IFAM im Rahmen von PostData auch mit der Quantifizierung dieser Mechanismen beschäftigt. Dazu wurden die in Abbildung 26 dargestellten DVA- (a) und DRT-Spektren (b) näher betrachtet. Wie bereits in UAP 2.1 beschrieben, zeigten die DVA-Spektren eine deutliche Verringerung der Gesamtkapazität $\Delta Q_1 + \Delta Q_2$, die mit einer simultanen Verringerung der Menge an Kapazität ΔQ_1 einherging, die zwischen 100% SoC und dem zentralen Anodenpeak entladen wurde.

$$(2) \quad LLI_{DVA} = \frac{(\Delta Q_1 + \Delta Q_2)_1 - (\Delta Q_1 + \Delta Q_2)_n}{(\Delta Q_1 + \Delta Q_2)_1} * 100$$

$$(3) \quad LLI_{DRT} = \frac{\max(\gamma P5)_n - \max(\gamma P5)_1}{\max(\gamma P5)_1} * 100$$

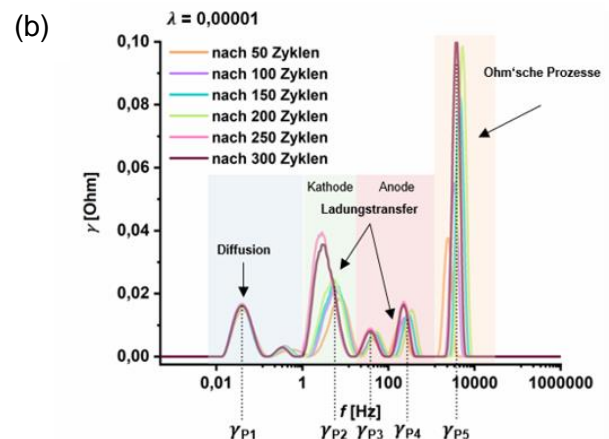
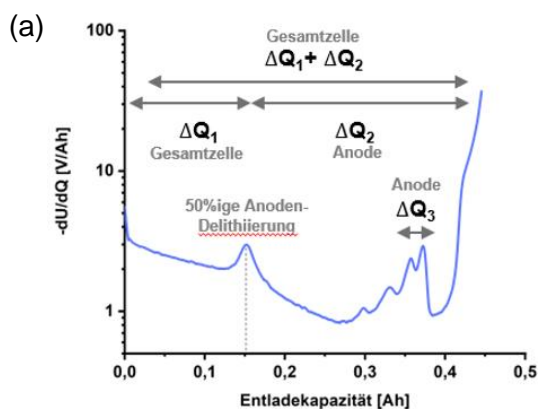


Abbildung 26: Gleichungen zur Quantifizierung von LLI mittels DVA (a) und DRT (b).

Im Gegensatz dazu wiesen die charakteristischen Anodenmerkmale ΔQ_2 und ΔQ_3 nur eine geringfügige Änderung auf. Somit wurde die Abnahme der Gesamtkapazität auf einen Shift im Elektroden-Balancing durch den Verlust von Lithiuminventar (LLI) zurückgeführt. In diesem Fall konnte also eine direkte Korrelation zwischen dem Feature $\Delta Q_1 + \Delta Q_2$ und LLI hergestellt werden. Aus diesem Grund wurde dieses Feature zur Herleitung einer Gleichung zur Quantifizierung von LLI (Gleichung (2)) herangezogen, wobei $(\Delta Q_1 + \Delta Q_2)_1$ den im ersten Checkup-Test ermittelten Wert von

$\Delta Q1 + \Delta Q2$ beschreibt (Zelle im ungealterten Zustand), während $(\Delta Q1 + \Delta Q2)_n$ den im n-ten Checkup-Test detektierten $\Delta Q1 + \Delta Q2$ -Wert kennzeichnet. Gleichzeitig wurde im zugehörigen DRT-Spektrum eine Korrelation zwischen dem Feature γ_{P5} und LLI festgestellt. Analog zu Gleichung (2) wurde daher Gleichung (3) für die Quantifizierung von LLI mittels DRT-Analyse definiert.

Abbildung 27 zeigt die zyklenabhängige Entwicklung von LLI_{DVA} (Abbildung 27(a)) und LLI_{DRT} (Abbildung 27(b)). Unabhängig von der eingesetzten Messmethodik, konnte mithilfe der definierten Gleichungen eine ähnliche LLI-Entwicklung beobachtet werden. Beide Messmethoden sind somit potenziell zur Identifizierung und Quantifizierung gezielter Degradationsphänomene einsetzbar. Darüber hinaus konnte ähnlich zur SoH-Definition ein neuer Parameter abgeleitet werden, der als Maß für die durch LLI verursachte Zellalterung herangezogen werden kann.

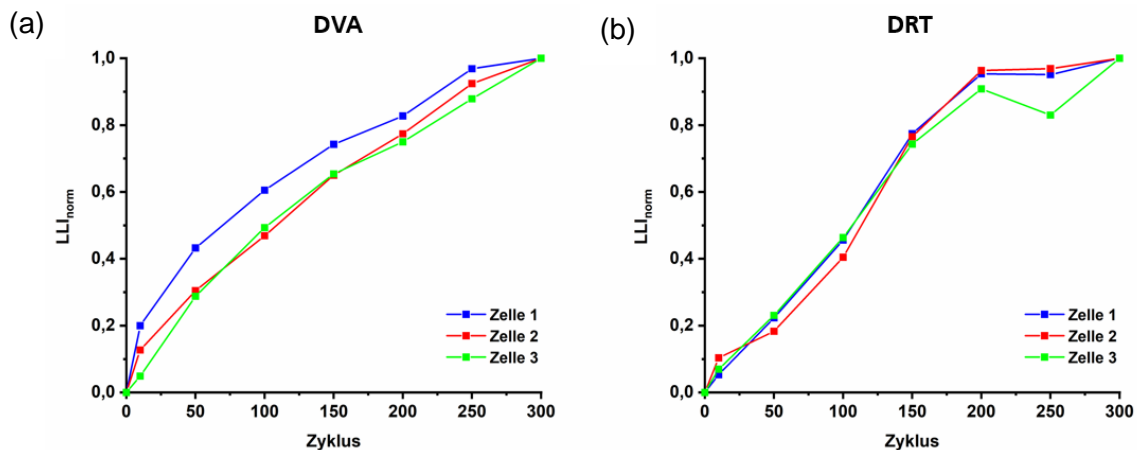


Abbildung 27: Zyklenabhängige Entwicklung von LLI_{DVA} (a) und LLI_{DRT} (b).

3. Synchronisation von elektrischen und optischen Messdaten

Schließlich erfolgte in diesem UAP die **Zusammenführung von optischen und elektrischen Daten zur Alterungsbestimmung**. Dabei lag der Fokus auf der Entwicklung einer Strategie zur automatisierten Synchronisation der elektrischen Daten, die an den sensorintegrierten Zellen im 9,8 x 11,5 cm²-Format während der SoH-Bestimmung des Checkup-Tests (Schritt 1) erfasst wurden, mit den zugehörigen optischen Daten.

Die Datensynchronisation stellte eine besondere Herausforderung dar, da die Messungen am IFAM mit unterschiedlichen Messgeräten durchgeführt werden mussten. Während die Lastzyklen mithilfe eines Maccor-Zyklisierers aufgenommen wurden, wurden die Checkup-Tests mit einem Gamry-Potentiostaten detektiert. Die

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

optischen Sensorsignale wurden über die gesamte Dauer der elektrischen Messungen mit kommerziell erhältlichen FiSens-Spektrometern erfasst.

Aufgrund der Verwendung unterschiedlicher Testgeräte unterschieden sich die Dateistruktur und -formate der erfassten experimentellen Daten erheblich. Während jede Lastzyklen-Sequenz in einer einzelnen txt.-Datei gespeichert wurde, wurde für jede Zelle und jeden Checkup-Test vom Gamry-Testgerät ein Dateiordner generiert, in dem für jeden Messschritt (Ladung, Entladung, etc.) im Checkup-Ordner eine separate Datei angelegt wurde (>100 Dateien/Ordner). Somit wurden allein für die Checkup-Tests am Ende der Messung insgesamt über 3000 separate Gamry DTA.-Dateien erzeugt. Im Gegensatz dazu waren die optischen Daten nicht mit der elektrischen Messprozedur verknüpft. Die FiSens-Daten wurden unabhängig vom jeweiligen elektrischen Testschritt kontinuierlich und über die gesamte Messdauer erhoben. Sobald eine Datenmenge von ca. 100 kB erreicht war, wurden die optischen Messdaten in einer .txt-Datei abgespeichert.

Da das Ziel darin bestand, die Daten, die während der SoH-Bestimmung der Checkup-Tests erfasst wurden, mit den zugehörigen optischen Daten zu vergleichen, wurden im ersten Schritt der Datenverarbeitung die relevanten Lade- und Entladezyklen aus den Checkup-Dateien extrahiert. Dazu wurde ein Skript erstellt, das die gewünschten Checkup-Dateien automatisch anhand ihres Dateinamen in einen neuen Ordner überführte.

Neben der unterschiedlichen Datei-Strukturierung, gab es auch innerhalb der Datensätze wesentliche Unterschiede zwischen den Daten, die mit den unterschiedlichen Messmethoden generiert wurden. So enthielten die verschiedenen Dateien neben der eigentlichen Header-Zeile eine unterschiedliche Anzahl an Pre- bzw. Subheader-Zeilen. Beispielsweise waren in den Checkup-Dateien je nach Testschritt bis zu 56 Preheader-Zeilen sowie eine Subheader-Zeile vorhanden, während die Fisens-Dateien neben der Kopfzeile noch eine Subheader-Zeile enthielten. Zur automatisierten Verarbeitung mit Python, mussten die Daten als sogenannte ‚dataframes‘ eingelesen werden. Dieser Vorgang erforderte jedoch, dass die Daten zunächst in ein einlesbares Format gebracht wurden, da nur die gemessenen Daten inklusive ihrer zugehörigen Parameterbezeichnungen eingelesen werden konnten. Hierzu war es erforderlich, relevante Informationen aus den Header-Zeilen der Rohdaten zu extrahieren und ggfls. miteinander zu kombinieren, um

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

passende Spaltenbezeichnungen für die verschiedenen Messparameter zu erhalten (z.B. Parameter + Einheit).

Die größte Herausforderung bei der Synchronisation der elektrischen und optischen Daten, bestand jedoch darin, dass die Datensätze nicht über sogenannte ‚Common Identifiers‘ miteinander verknüpft werden konnten. Hiermit sind Merkmale oder Attribute gemeint, die in beiden Datensätzen vorkommen (z.B. eindeutige IDs oder Zeitstempel, etc.). Während die relevanten Checkup-Dateien neben den Parametern Strom und Spannung auch den Parameter ‚Time Step‘ (Sampling-Rate in [s] mit Startzeitpunkt 0) enthielten, war in den FiSens-Daten zusätzlich zu den Signalen der insgesamt 14 Sensorstellen (7 interne und 7 externe Sensorstellen) nur der Parameter ‚Datetime‘ vorhanden (Datumsstempel im Format [YYYYMMDDHHMMSS.SSS]). Darüber hinaus, unterschieden sich die Sampling-Frequenzen (d.h. die Häufigkeit, in der ein Datenpunkt erfasst wurde) für die verschiedenen Messgeräte. Während im Checkup-Test nur alle 5 s ein Datenpunkt erfasst wurde, wurden die optischen Signale in Abständen von ca. 0.2 s detektiert.

Um dennoch eine Synchronisierung der Daten erzielen zu können, musste also zunächst ein ‚Common Identifier‘ generiert werden. Hierzu wurden das Startdatum sowie die Start-Uhrzeit der jeweiligen Messung aus den Preheader-Zeilen der Checkup-Dateien extrahiert und in ein Datumsformat überführt. Zusammen mit der bekannten Sampling-Rate von 5s konnte nun auch für die Checkup-Daten ein ‚Datetime‘-Parameter erstellt werden. Im nächsten Schritt wurde das Start- und Enddatum des jeweiligen Checkup-Tests ermittelt. Anschließend wurden aus den FiSens-Dateien die Datenpunkte extrahiert, die innerhalb dieses gewünschten Datumsbereichs lagen. Innerhalb dieses Datumsbereichs wurde für jedes FiSens-File ein Resampling durchgeführt (Sampling Time = 5s). Um sicherzustellen, dass für jeden Zeitpunkt im Datumsbereich Daten existieren, wurden die Checkup-Daten mittels linearer Interpolation auf den betrachteten Datumsbereich interpoliert. Die FiSens-Daten wurden auf denselben Datumsbereich interpoliert, um sicherzustellen, dass sie mit den interpolierten Checkup-Daten synchronisiert waren. Die verschiedenen Schritte der Daten(vor)verarbeitung sowie die Synchronisation der Datensätze wurden fast vollständig automatisiert, sodass lediglich eine manuelle Eingabe der Quellpfade der zur Verfügung stehenden elektrischen und optischen Rohdaten erforderlich war.

Mithilfe der oben beschriebenen Prozedur wurde zu jeder relevanten Checkup-Datei eine zugehörige FiSens-Datei generiert.

Während die elektrischen Daten der sensorintegrierten Zellen bereits im UAP 2.1 beschrieben und diskutiert wurden, werden nachfolgend die optischen Daten, die während der SoH-Bestimmung an einer sensorintegrierten Zelle (Zelle 2) erhoben wurden, betrachtet. Die sensorintegrierten Zellen wurden am HHI zusätzlich mit externen Glasfasersensoren ausgestattet. Die Anordnung der internen Sensorstellen im Anodenmaterial, bzw. der externen Sensoren auf der Zelloberfläche, ist in Abbildung 28 dargestellt.

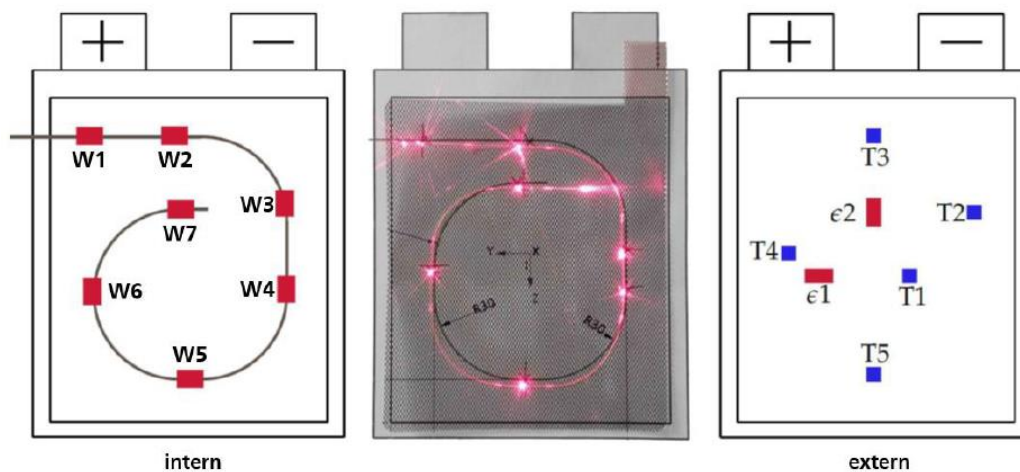


Abbildung 28: Anordnung von internen Sensorstellen im Anodenmaterial von NMC 622/Graphit-Pouch-Zellen (links) und externen Sensorstellen auf der Zelloberfläche (rechts).

In Abbildung 29 sind die optischen Daten dargestellt, die im Rahmen der SoH-Bestimmung während verschiedener Checkup-Zyklen an den externen Sensorpositionen erfasst wurden. Unabhängig von der Position, an der die Sensorstellen auf der Zelle platziert waren, zeigten die Daten über die betrachteten Zyklen ein signifikantes Rauschen und einen unregelmäßigen Verlauf. In diesem Fall konnte keine Korrelation zwischen den Sensorsignalen und dem Alterungszustand der Zelle festgestellt werden.

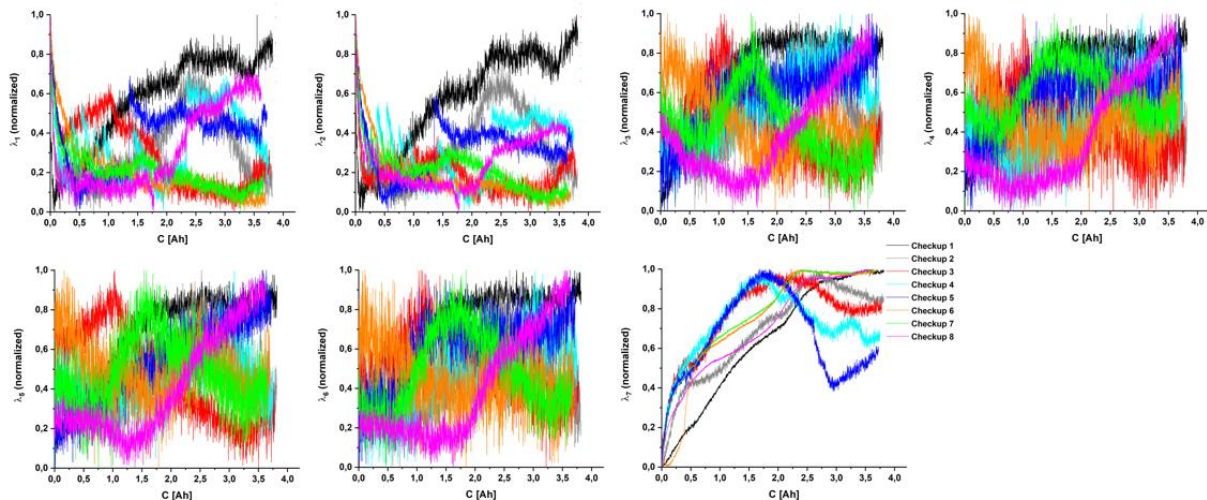


Abbildung 29: Kapazitätsabhängige Verläufe der optischen Daten, die im Rahmen der SoH-Bestimmung während verschiedener Checkup-Zyklen an den externen Sensorpositionen auf Zelle 2 erfasst wurden.

Im Gegensatz dazu wiesen die Sensordaten, die durch die integrierte Sensorik erfasst wurden (Abbildung 30), an den einzelnen Sensorpositionen einen charakteristischen Verlauf auf. In diesem Fall war mit zunehmender Checkup-Zahl ein eindeutiger Alterungstrend der Sensorsignale erkennbar. Auffällig ist, dass die Signalverläufe der Sensoren W1 und W7 eine deutliche Ähnlichkeit aufweisen. Sensor W1 war dabei unmittelbar unterhalb des Stromableiters am Rand der Zelle positioniert, während Sensor W7 im Zentrum der Zelle platziert war. Trotz der unterschiedlichen Positionen scheinen die Umgebungsbedingungen an beiden Stellen vergleichbar zu sein. Ebenso zeigen die Sensoren W2 und W5 ähnliche Signalverläufe. Diese Sensoren waren gegenüberliegend an den kürzeren Seiten der Zelle nahe den Rändern angebracht. Darüber hinaus weisen auch die Sensoren W3, W4 und W6 ähnliche Trends auf. Sensor W3 und W4 waren nebeneinander im äußeren Bereich entlang der Längsseite der Zelle positioniert, während Sensor W6 an der gegenüberliegenden Längsseite, exakt gegenüber von W4, angebracht war. Angesichts dieser Anordnung sind die beobachteten Ähnlichkeiten in den Signalverläufen nicht überraschend.

Aufgrund der geringen Signalqualität der externen Sensoren wurden zur Zusammenführung der elektrischen und optischen Daten ausschließlich die mittels integrierter Glasfasersensorik erfassten Sensordaten verwendet. Um einen direkten Vergleich zwischen DVA-Daten und den optischen Datensätzen zu ermöglichen, wurden die Sensordaten nach der Kapazität abgeleitet ($d\lambda/dQ$). Diese Methode der

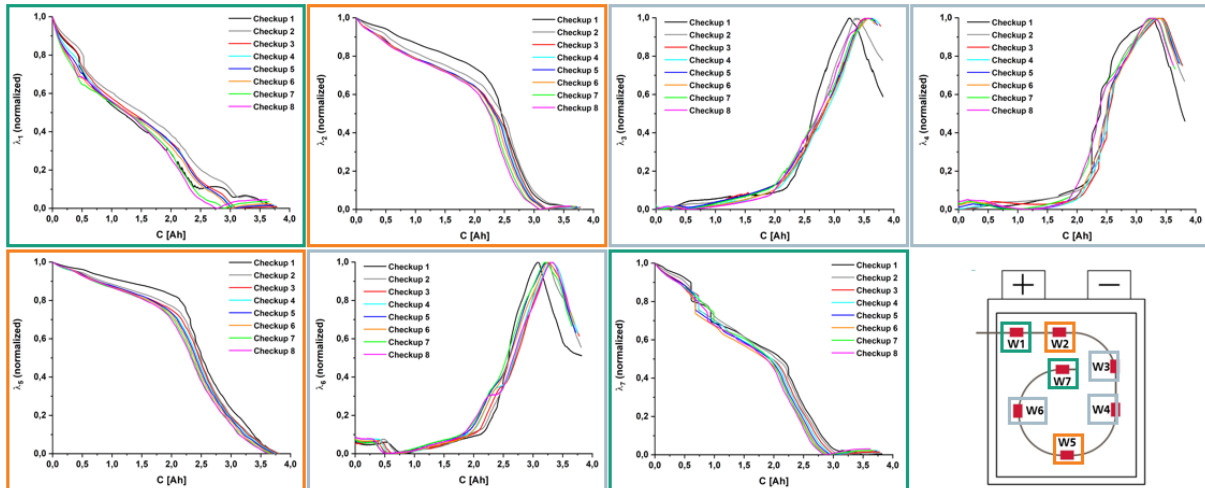


Abbildung 30: Kapazitätsabhängige Verläufe der optischen Daten, die im Rahmen der SoH-Bestimmung während verschiedener Checkup-Zyklen an den internen Sensorpositionen auf Zelle 2 erfasst wurden.

Datenanalyse wird nachfolgend als **Differenzielle Wellenlängenanalyse (DWA)** bezeichnet.

Die abgeleiteten Spektren wurden anschließend unter Verwendung der Fast Fourier Transformation (FFT) geglättet, wobei ein Filter mit 100 Punkten implementiert wurde, um sicherzustellen, dass keine relevanten Merkmale ignoriert wurden. In Abbildung 31 sind die resultierenden DWA-Spektren für die verschiedenen Sensorpositionen dargestellt. Auch in diesem Fall konnten die zuvor beschriebenen Ähnlichkeiten in den Signalverläufen für verschiedene Sensorstellen beobachtet werden.

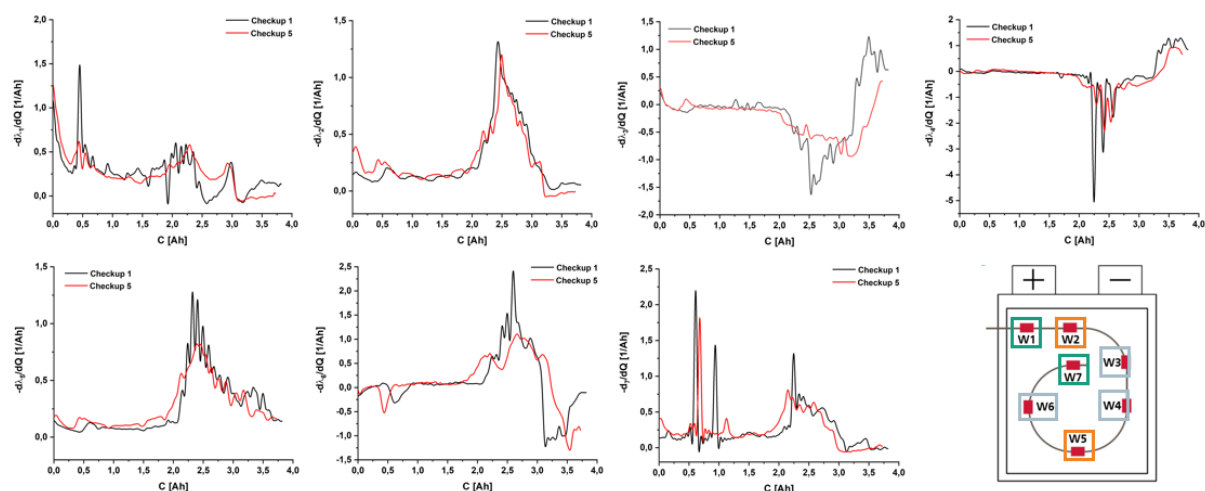


Abbildung 31: DWA-Spektren, die für interne Sensordaten im 1. und 5. Checkup-Test ermittelt wurden.

Hierbei ist anzumerken, dass in den Spektren, die für den 1. Checkup-Test generiert wurden, prominente Spike-Peaks auftauchen, die im Checkup 5 nicht mehr zu sehen sind. Außerdem weisen ausschließlich die Spektren, die an den Sensorstellen W2 und W5 gemessen wurden, einen eindeutigen und fast gleichen Trend auf. Bei der vergleichenden Betrachtung der optischen und elektrischen Messdaten liegt daher nachfolgend der Fokus auf den Daten, die an der Sensorstelle W5 generiert wurden. Entsprechend der in UAP 2.1 diskutierten Analysen wurden anhand der Entladekurven (Abbildung 32(a)), die für Zelle 2 in unterschiedlichen Alterungsstadien gemessen wurden, DVA-Spektren abgeleitet (Abbildung 32(b)). Diese weisen die gleichen alterungsrelevanten Merkmale auf wie die Spektren der NMC 111-Zellen, die in UAP 2.1 detailliert analysiert wurden. Im Gegensatz zu den NMC 111-Zellen zeigten die in diesem UAP betrachteten NMC 622-Zellen jedoch weniger starke Alterungserscheinungen. Dennoch können in den DVA-Spektren alterungsbedingte Veränderungen identifiziert werden, die überwiegend auf eine Änderung der Gesamtkapazität der Zelle zurückgeführt wurden.

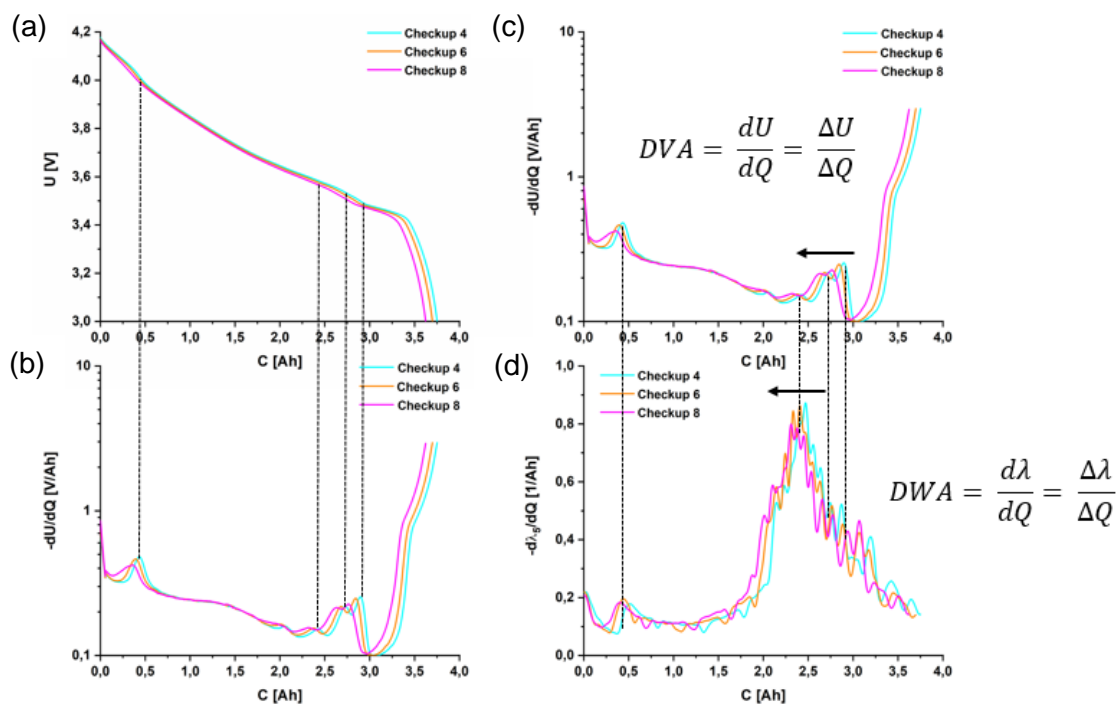


Abbildung 32: Vergleichende Betrachtung der internen optischen und elektrischen Messdaten, die an Sensorstelle W5 für Zelle 2 in unterschiedlichen Alterungsstadien generiert wurden. (a) gemessene Entladekurven; (b)+(c) abgeleitete DVA-Spektren; (d) berechnete DWA-Spektren.

Der Vergleich der DVA-Spektren (Abbildung 32(c)), mit den DWA-Spektren (Abbildung 32(d)), die an der Sensorstelle W5 generiert wurden, zeigt, dass die Maxima in den DVA-Spektren mit den Minima in den DWA-Spektren korrelieren.

Darüber hinaus zeigen die DWA-Spektren zusätzliche Peaks, die auf lokale Unterschiede in der Materialzusammensetzung oder -struktur innerhalb der Elektrode und somit auf variierende mechanische und elektrochemische Eigenschaften zurückgeführt werden können. Die Verschiebung dieser Peaks könnte daher aus Alterungsprozessen, wie dem Wachstum von SEI-Schichten oder dem Auftreten von Mikrorissen, resultieren. Zukünftig könnten weitere Analysemethoden eingesetzt werden, um Veränderungen in der Kristall- und Mikrostruktur des Elektrodenmaterials zu identifizieren und diese Annahmen zu validieren.

Abschließend wurde das Sensorsignal zusätzlich nach der Spannung abgeleitet (**Inkrementelle Wellenlängenanalyse, IWA**), um einen Vergleich der optischen Sensordaten mit entsprechenden ICA-Analysen vornehmen zu können (Abbildung 33). Auch in diesem Fall zeigen die aus der Kapazitätskurve (Abbildung 33(a)) abgeleiteten ICA-Spektren (Abbildung 33(b)) die bereits in UAP 2.1 identifizierten Features. Bemerkenswert ist, dass die IWA-Spektren (Abbildung 33(c)) nahezu identische Merkmale aufweisen, wie die ICA-Spektren (Abbildung 33(d)).

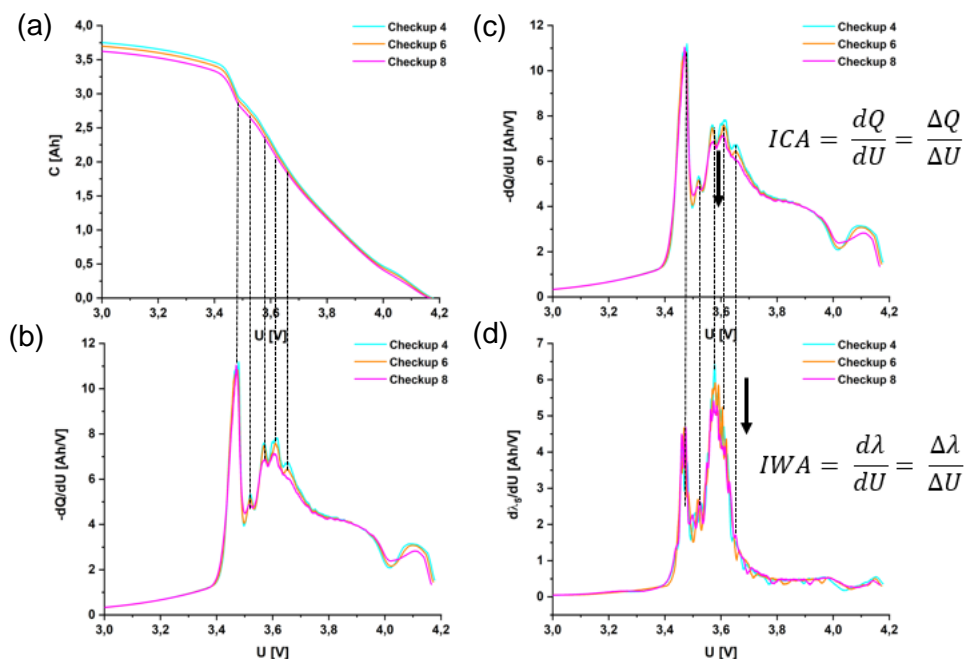


Abbildung 33: Vergleichende Betrachtung der internen optischen und elektrischen Messdaten, die an Sensorstelle W5 für Zelle 2 in unterschiedlichen Alterungsstadien generiert wurden. (a) gemessene Entladekurven; (b)+(c) abgeleitete ICA-Spektren; berechnete IWA-Spektren.

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

Hierbei besteht eine direkte Korrelation zwischen den Maxima in den ICA- und IWA-Spektren. Im Gegensatz zur DVA liefert die IWA keine zusätzlichen Erkenntnisse, jedoch können die Peaks in den IWA-Spektren mithilfe der ICA-Spektren charakteristischen physikalischen Prozessen zugeordnet werden.

UAP 4.1: Kontinuierliche Alterungsbestimmung: Bewertung der Kombinatorischen Nutzung der Tests und Methoden

Die im Rahmen von BeLiMIA durchgeführten Arbeiten präsentieren innovative Methoden zur Analyse und Quantifizierung von Alterungsprozessen. Die umfassende Alterungsdiagnostik von Batteriezellen konnte durch die im Projekt adressierte kombinatorische Nutzung verschiedener Test- und Analysemethoden erheblich verbessert werden. Eine zentrale Rolle spielten hierbei zyklische Alterungstests und DVA, bzw. ICA-Analysen sowie EIS und DRT-Analysen. Diese Methoden bieten eine solide Grundlage zur Zustandsbewertung der Zellen. Darüber hinaus konnten mechanische und chemische Veränderungen durch die Ausstattung von Zellen mit integrierter Glasfasersensorik detektiert werden.

Dabei lag der Fokus am IFAM insbesondere auf der Auswertung der Alterungsdaten, der Identifizierung und Quantifizierung dominanter Alterungsprozesse und der Zusammenführung elektrischer und optischer Messdaten mithilfe automatisierter Workflows. Bei der Auswertung von Impedanzdaten wurden zwei Methoden verglichen: die DRT-Analyse und die Analyse mithilfe von ECM. Die DRT-Analyse transformiert Impedanzdaten von der Frequenz- in die Zeitebene und ermöglicht die Identifikation und Quantifizierung von spezifischen Polarisations- und Alterungsprozessen. Gegenüber der ECM bietet diese Methode eine detailliertere und weniger mehrdeutige Analyse der Impedanzdaten und ermöglicht eine präzisere Diagnose des Zellzustands. Sie ist besonders nützlich für die Entwicklung neuer Batteriematerialien sowie für die Qualitätssicherung in der Batteriefertigung.

Ein weiterer Schwerpunkt lag auf der quantitativen Analyse dominanter Alterungsprozesse mithilfe einer kombinierten Anwendung von DVA und DRT-Analyse. Diese kombinierte Methode ermöglicht die Identifikation und Quantifizierung dominanter Alterungsprozesse wie den Verlust von Lithiuminventar (LLI). Diese umfassende Sicht auf die elektrochemischen Prozesse innerhalb der Zellen ermöglicht eine genaue Quantifizierung spezifischer Alterungsmechanismen und ist besonders

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

relevant für die Entwicklung und Optimierung von Elektrodenmaterialien sowie für die Diagnostik und Überwachung von Batteriezuständen in realen Anwendungen.

Als besondere Innovationsschwerpunkte wurden im Rahmen von BeLiMIA die Integration von Glasfasersensoren in die Batteriezellen und die Synchronisation der optischen mit den elektrischen Daten adressiert. Die integrierte Sensorik lieferte detaillierte Informationen über lokale Zustände und Veränderungen innerhalb der Zelle, die mit konventionellen Methoden nicht erfasst werden können. Die Interpretation der DWA- und IWA-Spektren soll zukünftig durch zusätzliche Materialcharakterisierungen weiter gestützt werden. Hierbei sollen die beobachteten Veränderungen in der Kristall- und Mikrostruktur des Elektrodenmaterials durch den Einsatz von Röntgendiffraktometrie (XRD), Rasterelektronenmikroskopie (REM) und Röntgenphotoelektronenspektroskopie (XPS) genauer identifiziert und validiert werden. Auf diese Weise soll eine Früherkennung von Alterungsprozessen mithilfe der integrierten Sensorik ermöglicht werden.

UAP 4.2: Kontinuierliche Qualitätssteigerung: Bewertung der Entwicklungen und Technologien

Die in BeLiMIA entwickelten innovativen Ansätze und Methoden bieten einen erheblichen Mehrwert gegenüber bestehenden Techniken, indem sie detailliertere und frühzeitigere Einblicke in die Alterungsprozesse von Batteriezellen ermöglichen. Zukünftige Arbeiten sollten sich auf die Verbesserung der externen Sensorik, die Validierung der optischen Sensordaten durch zusätzliche Analysemethoden und die Skalierbarkeit der Ansätze konzentrieren, um deren breiten industriellen Einsatz zu ermöglichen. Schließlich müssen die entwickelten Methoden auf größere Zellformate und industrielle Fertigungsprozesse übertragen werden. Es ist notwendig, die Skalierbarkeit der Ansätze zu testen und deren Integration in bestehende Produktions- und Qualitätssicherungssysteme zu evaluieren. Insgesamt sind die in BeLiMIA erzielten Ergebnisse besonders wertvoll für das Batteriemangement in Anwendungsbereichen, die eine hohe Zuverlässigkeit und lange Lebensdauer erfordern.

2. wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Der bedeutendste Posten der beantragten Zuwendungen wird von den Personalressourcen eingenommen, da die Arbeitspakete mit erheblichem wissenschaftlichen und technischen Personalaufwand verbunden sind. Eine detaillierte Aufschlüsselung der unterschiedlichen Positionen ist dem zahlenmäßigen Nachweis zu entnehmen, der dem Projektträger seitens der Fraunhofer Zentralverwaltung übermittelt wird.

3. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Die Bundesmittel wurden eingesetzt, um die notwendigen Entwicklungsarbeiten im Rahmen des Projekts zu finanzieren. Diese Arbeiten sind mit wissenschaftlich-technischen und wirtschaftlichen Risiken verbunden, die die Antragsteller nicht alleine bewältigen können. Bereits zu Beginn der Projektplanung wurde die Notwendigkeit und Angemessenheit dieser Arbeiten berücksichtigt. Die Anpassung der Projektlaufzeit wurde in Abstimmung mit dem Projektträger vorgenommen.

4. voraussichtlicher Nutzen, insbesondere der Verwertbarkeit des Ergebnisses im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplans

Durch den Aufbau und die technische Realisierung des IFAM-DBS konnten die in BeLiMIA erzeugten Daten in PostData systematisch erfasst, zusammengeführt und analysiert werden. Dadurch wurde am IFAM zusätzliches Know-how im Bereich der Alterungsdiagnostik von LIB-Zellen sowie im Bereich des Datenmanagements und der effizienten und nachhaltigen Datenverwertung aufgebaut, wodurch die angestrebten Verwertungsziele des IFAM erfolgreich umgesetzt werden konnten. Im Rahmen der Projektlaufzeit wurde am IFAM die eingetragene Marke BatterieDigital® etabliert (01/2022), die die technische Umsetzung einer umfassenden Digitalisierungsstrategie zur intelligenten Nutzung von Batteriedaten adressiert, wobei die Digitalisierung aller Methoden und Prozesse zur Datengenerierung und -verarbeitung sowie ein systematisches Management der Daten im Fokus stehen. Die in PostData erzielten Ergebnisse werden im Rahmen von BatterieDigital® direkt verwertet und zur Entwicklung digitaler Tools und Services, insbesondere zur Bestimmung des Gesundheitszustands und Restwertes von Batteriezellen, eingesetzt.

Insgesamt nehmen die Bestrebungen Batteriedaten schneller, effizienter und valider verwertbar und nachhaltig nutzbar zu machen am IFAM einen großen Stellenwert ein.

Schlussbericht zum Verbundprojekt BeLiMIA

Dank BeLiMIA und den übergreifenden Clusteraktivitäten sind wertvolle Netzwerke entstanden, die zur erfolgreichen Beantragung des BMBF-geförderten Projekts QuaLiProM (Projektstart: 12/2024) geführt haben, das sich mit der Entwicklung eines Klassifizierungs-Tools zur KI-basierten Zustandsbestimmung von Batteriezellen befasst. Darüber hinaus fließen die erworbenen Kompetenzen in ein Fraunhofer-internes Vorhaben zur Schaffung eines Fraunhofer Forschungsdatenraums für Batteriedaten ein. Aktuell wird seitens des IFAM ein Vorhaben beantragt, das mit der Realisierung eines universell einsetzbaren Softwaremoduls zur automatisierten Verarbeitung von Batteriedaten für die Anwendung von Künstlicher Intelligenz auf den industriellen Transfer der in PostData generierten Ergebnisse abzielt.

5. Während der Durchführung des Vorhabens dem ZE bekannt gewordenen Fortschritts auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Es wurden drei nennenswerte interessante Artikel veröffentlicht, ansonsten sind dem Berichtersteller keine relevanten Ergebnisse oder Schutzrechte auf diesem Gebiet bekannt.

H. Hamed, M. Yusuf, M. Suliga, B. Ghalami Choobar, R. Kostos, M. Safari, An Incremental Capacity Analysis-based State-of-health Estimation Model for Lithium-ion Batteries in High-power Applications, Batteries & Supercaps, 6(9), 2023,

<https://doi.org/10.1002/batt.202300140>

Y. Lu, C.-Z. Zhao, J.-Q. Huang, Q. Zhang, The Timescale Identification Decoupling Complicated Kinetic Processes in Lithium Batteries, Joule, 6(6), 2022,

<https://doi.org/10.1016/j.joule.2022.05.005>.

E. Goldammer, J. Kowal, Determination of the Distribution of Relaxation Times by Means of Pulse Evaluation for Offline and Online Diagnosis of Lithium-Ion Batteries, Batteries, 7(2), 2021, <https://doi.org/10.3390/batteries7020036>

6. erfolgte oder geplante Veröffentlichungen des Ergebnisses

Veröffentlichungen:

- *‘Identification and Quantification of Battery Aging Processes using Differential Analysis Techniques and the Computation of the Distribution of Relaxation Times’* (Autoren: D. Koster, K. Yezerka, D. Fenske and J. Schwenzel) in Bearbeitung am IFAM

Poster/Vorträge:

- Posterbeitrag auf der **Batterietagung NRW 2023** in Aachen zum Thema *‘Identification of Higher-Level Aging Processes in Lithium-Ion Batteries: Equivalent Circuit Modeling and Computation of the Distribution of Relaxation Times’* (Autoren: N. Meng, D. Koster, K. Yezerska, S. Freese, D. Fenske and J. Schwenzel)
 - Posterbeitrag auf der **Battery Production Conference IBPC 2022** in Braunschweig zum Thema *‘Comparison of Aging Parameters extracted from Impedance Data using an Equivalent Circuit Model and the Distribution of Relaxation Times’* (Autoren: N. Meng, S. Freese, K. Yezerska, D. Koster, D. Fenske and J. Schwenzel)
-

Anlagen:

- kurzgefasster Erfolgskontrollbericht