

Öffentlicher Abschlussbericht im BMBF Projektcluster Analytik/Qualitätssicherung (AQua)

Vorhabenbezeichnung: CharLiSiKo – Charakterisierung von Li-Abscheidungen auf Graphitanoden und Si/Graphit Kompositanoden	
Zuwendungsempfänger: Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung Baden-Württemberg (ZSW) Fachgebiet Elektrochemische Materialentwicklung, Helmholtzstr. 8, 89081 Ulm	Förderkennzeichen 03XP0333A
Projektleiter PD Dr. rer. nat. Thomas Waldmann	Berichtszeitraum 01.01.2021 - 30.06.2024

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung



Abschlussbericht

1.1. Zielsetzung

Das Vorhaben CharLiSiKo leistete wichtige Beiträge zu den Zielen des Aqua-Clusters durch

- 1) Die Weiterentwicklung bestehender und die Entwicklung neuer experimenteller operando und ex-situ Methoden und elektrochemischen Modellierungen auf Elektroden- und Zellebene
- 2) Die Validierung der Methoden bzgl. Reproduzierbarkeit und Vergleich mit komplementären Methoden
- 3) Die Erarbeitung effizienter und reproduzierbarer Workflows für die Charakterisierung von Li-Abscheidungen auf Graphit (0% Si) und auf Si/Graphit Kompositanoden (> 0% Si)
- 4) Die Verhinderung bzw. Verminderung von Li-Abscheidungen auf Graphitanoden und Si/Graphit Kompositanoden

1.2. Einordnung der Projektzellen im Kontext mit anderen kommerziellen Zelltypen

Die kommerziellen Projektbenchmarkzellen im 21700-Format hatten eine Ni-reiche Kathode und Si-haltige Graphitanoden. Abbildung 1 zeigt die Einordnung der im Projekt getesteten kommerziellen Rundzellen im Kontext mit 14 weiteren kommerziellen Zellen aus anderen Projekten.

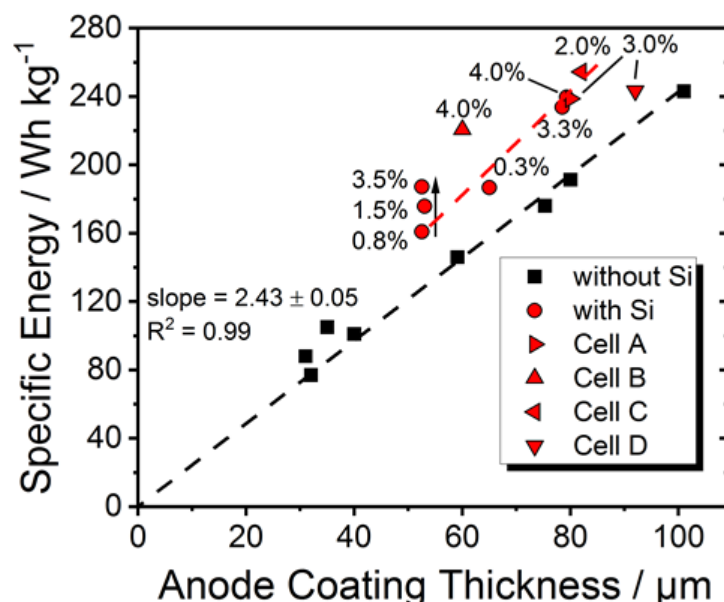


Abbildung 1 Einordnung der vier im Projekt getesteten Zelltypen mit 14 anderen kommerziellen Zelltypen. Cell A-C: zunächst auf Grund der früheren Verfügbarkeit getestete 18650-Zelltypen [1], Cell D: 21700-Benchmarkzelle. Die %-Angaben entsprechen dem Si-Gehalt der Anoden in wt.-%. Reproduced from [1] with permission, CC-BY.

Acht der Zelltypen enthalten reine Graphitanoden, zehn weitere Zelltypen enthalten zusätzlich eine Si-Komponente. Einen ähnlichen Plot hatten wir bereits vorher veröffentlicht [2], jedoch war die Unterscheidung von Zellen mit Si in der Anode erst nach einer späteren Methodenentwicklung im Projekt LIB.de möglich [3,4].

In Abbildung 1 sieht man deutlich, dass die spezifische Energie der Zellen mit Graphitanoden mit einer sehr geringen Streuung linear ($R^2 = 0.99$) mit der einseitigen Anodenbeschichtungsstärke korrelieren. Für Zellen mit einer Si-Komponente in der Anode ist bei gleicher Beschichtungsstärke die spezifische Energie deutlich erhöht, bzw. wird die Beschichtungsstärke bei gleicher spezifischer Energie niedriger. Insgesamt kann man sagen, dass viele State-of-the-Art Zellen $\leq 4\%$ Si enthalten [1,5].

1.3. Methodenentwicklung GD-OES-Tiefenprofilmessung zur Charakterisierung von Li-Plating auf Si/Graphitanoden

Für die Methodenentwicklung zur Erkennung von Li-Plating auf Si/Graphitanoden mittels GD-OES wurden Anoden mit Li-Plating hergestellt werden. Hierzu wurden zyklische Alterungen unter voraussichtlichen Li-Plating Bedingungen durchgeführt. Da zu Beginn des Projekts noch keine Projektzellen zur Verfügung standen, wurden zunächst drei andere Zelltypen der Bauform 18650 (Tabelle 1) untersucht. Innenwiderstände, Spannungen und Zellmassen zeigten eine geringe Streuung, was die Eignung dieser Zellen für weitere Tests bestätigte. Zellöffnungen zeigten, dass alle drei Zelltypen Si/Graphit Anoden und NCA bzw. NC811 Kathoden enthielten. Mit diesen drei Zelltypen wurden erste GD-OES Tiefenprofile gemessen.

Tabelle 1 Eigenschaften der untersuchten Zelltypen für erste Untersuchungen (nicht Benchmarkzellen).

	Cell A	Cell B	Cell C
Si-content	~3 – 4 wt.-%	~2 – 3 wt.-%	~2 – 3 wt.-%
Si-particle size	< 10 μm	> 10 μm	< 10 μm
Gr particle size	> 10 μm	> 10 μm	> 10 μm
Coating thickness	60 μm	80 μm	80 μm
Specific Energy	236 Wh	254 Wh	270 Wh
Rev. Capacity RT at C/20	3.15 Ah	3.38 Ah	3.49 Ah
Application	High Power	High Energy	High Energy

Der Anteil von metallischen Lithiumabscheidungen auf Graphitanoden kann gemäß [6]

$$Li_{met} = Li_{det} - O_{det} \cdot \frac{2 \cdot M(Li)}{M(O)} \quad (1)$$

semi-quantitativ abgeschätzt werden. Hierbei sind Li_{det} und O_{det} die in GD-OES Tiefenprofilen gemessenen Elementgehalte von Li und O. Durch die Annahme, dass die durch Li und O gegebenen Verbindungen in Form von Li_2O vorliegen (Verbindung mit dem größten O-Anteil), wird der minimal vorliegende Anteil an metallischem Li in Graphitanoden bestimmt. In Si/Graphitanoden ist dies nicht ohne weiteres möglich, da die Si-Komponente ebenfalls O enthält. Dieses Problem wurde im Projekt durch Erweiterung von Gleichung (1) zu

$$Li_{met} = Li_{det} - \left(O_{det} - Si_{det} \frac{x \cdot M(O)}{M(Si)} \right) \cdot \frac{2 \cdot M(Li)}{M(O)} \quad (2)$$

erreicht [1]. Hier wird eine SiO_x -Komponente mit Sauerstoffgehalt x eingeführt. Durch die möglichen Werte von x im Bereich 0-1.25 ergibt sich ein Korridor für die Mindestmenge an Li-Plating auf der Anode (Abbildung 2). Diese neue GD-OES Methode wurde vom ZSW im Projekt veröffentlicht [1].

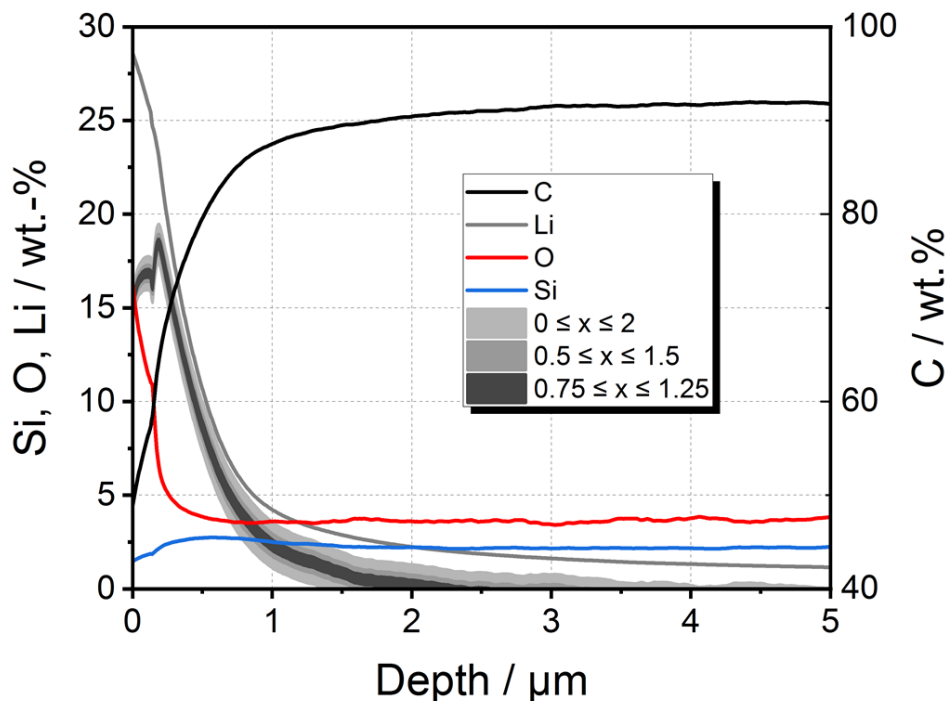


Abbildung 2 GD-OES Tiefenprofilmessung mit der im Projekt entwickelten Methode zur Bestimmung von Li-Plating (Bereich mit unterschiedlichen Grautönen). Reproduced from [1] with permission, CC-BY.

1.4. Anwendung der neuen GD-OES-Tiefenprofilmessung zur Charakterisierung von Li-Plating auf Si/Graphitanoden

Abbildung 3 zeigt GD-OES Tiefenprofile der 18650-Zelltypen A-C. In den frischen Zellen (Abbildung 3a-c) und nach Alterung bei $45^\circ C$ (Abbildung 3d-f) sind wie erwartet keine Li-Abscheidungen zu erkennen. Erkennbar ist jedoch ein Si-Peak an der Anodenoberfläche, der mit vorherigen Messungen mit anderen Zellen übereinstimmt [3,4,7].

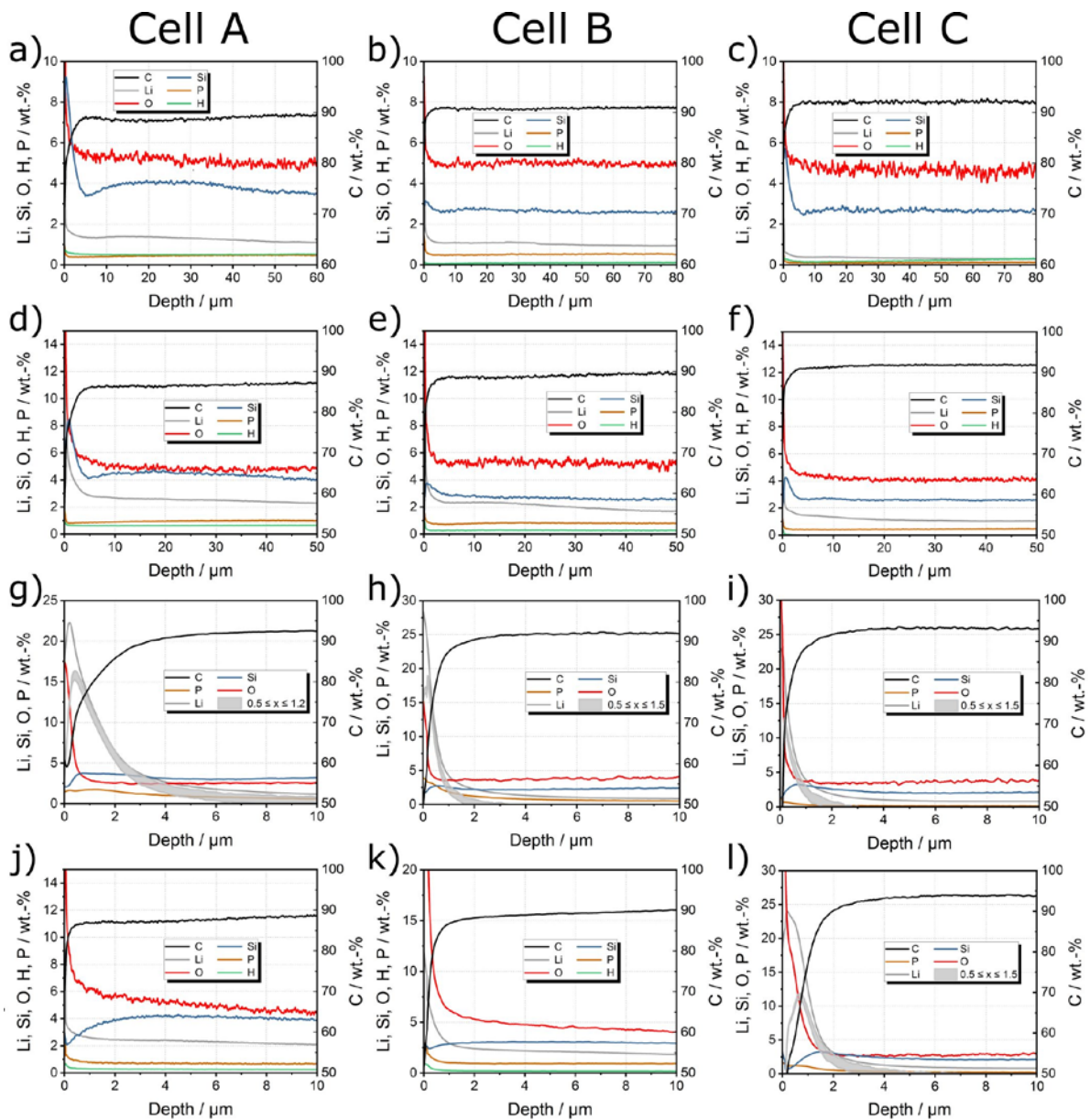


Abbildung 3 GD-OES-Tiefenprofile von Anoden der drei Zelltypen A-C; a)-c) frische Zellen, d)-f) gealterte Zellen bei 45°C; g)-i) bei niedriger Temperatur gealterte Zellen ohne vorherige Alterung bei 45°C; j)-l) bei niedriger Temperatur gealterte Zellen mit vorheriger Alterung bei 45°C. Reproduced from [1] with permission, CC-BY.

Im Gegensatz hierzu zeigen die GD-OES Tiefenprofilmessungen mit den Anoden aus den Zellen, die bei tiefen Temperatur zyklisiert wurden bei allen drei Zelltypen A-C Li-Abscheidungen auf der Anodenoberfläche (Abbildung 3g-i). Diese Messungen wurden mit der neu im Projekt entwickelten GD-OES-Methode für Si/Graphitanoden getestet. Dies ist in Übereinstimmung mit den Spannungsrelaxationskurven dieser Zelltypen (Abbildung 4 Mitte).

Abbildung 4 links zeigt differentielle Spannungsanalysen (DVA) Knopfhalbzellen mit ungealterten Elektroden. Die im Projekt hergestellten Anoden mit definierten Si-Gehalten dienten zur Identifikation der Peaks, die Si und Graphit zugeordnet werden konnten. Diese Peaks werden auch in aus den Zelltypen A-C rückgebauten Anoden

gefunden. Die Si-Gehalte in den Anoden der Zellen A, B und C tragen zu jeweils um 19.5%, 13.5% und 11.1% zur Anodenkapazität bei (Abbildung 4 links).

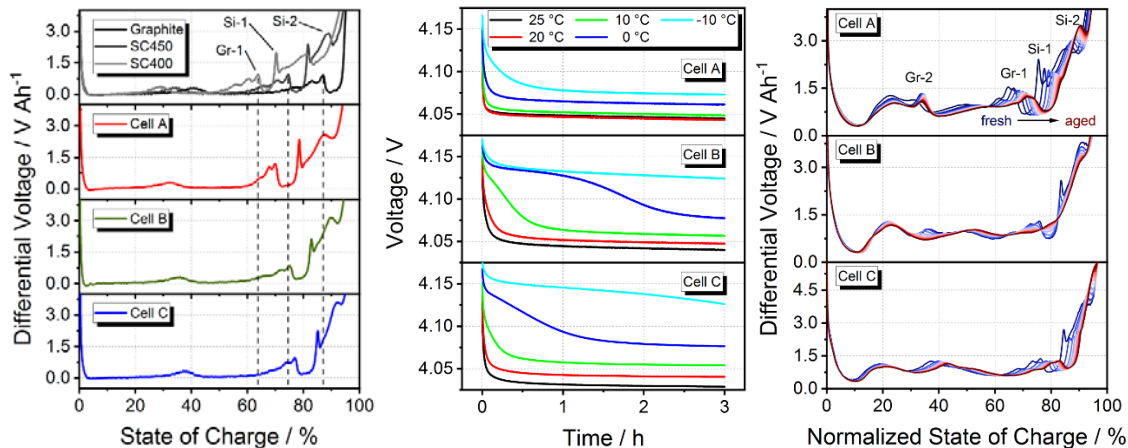


Abbildung 4 links: DVA von Knopfhalbzellen mit ungealterten Elektroden (oben: Projektelektroden, unten: Rückgebaut aus den Zelltypen A-C); Mitte: Spannungsrelaxationskurven der 21700-Vollzellen A-C; rechts: DVA der Vollzellen A-C während der zyklischen Alterung bei 45°C. Reproduced from [1] with permission, CC-BY.

DVA-Auswertungen mit den Spannungskurven der Vollzellen A-C während der zyklischen Alterung bei 45°C sind in Abbildung 4 rechts gezeigt, wobei die Kapazitäten auf 100% SOC normiert wurden. Hieraus war es möglich die Änderung der in der Si-Komponente gespeicherten Kapazität im Vergleich zum Kapazitätsverlust auf Zellebene zu vergleichen und daraus Rückschlüsse auf irreversiblen Li-Verlust bzw. Aktivmaterialverlust zurückzuführen. Zusätzlich wurden Anoden aus ungealterten und gealterten Zellen der Typen A-C in Knopfhalbzellen rückgebaut um den Einfluss der Si-Komponente auf den Gesamtkapazitätsverlust zu ermitteln.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass Zelltyp A, der aufgrund der hohen Porosität, der dünnen Beschichtung und der kleinen Si-Partikel nur bei sehr niedrigen Temperaturen Li-Ablagerungen auf der Anode zeigte (Abbildung 3j), nach dem irreversiblen Li-Verlust bei 45°C keinen weiteren Kapazitätsabfall unter Li-Ablagerungsbedingungen aufwies. Zelltyp B, der während der Alterung hauptsächlich irreversiblen Li-Verlust und kaum Aktivmaterialverlust zeigte, neigte bei niedrigen Temperaturen immer noch zur Li-Ablagerung (Abbildung 3k), die Zyklenstabilität war jedoch im Vergleich zur frischen Zelle B bei 0°C deutlich verlängert. Zelltyp C wies während der Alterung den am stärksten ausgeprägten Aktivmaterialverlust auf. Beim Zyklieren bei niedrigen Temperaturen zeigten sich nur geringe Unterschiede zwischen der frischen und der gealterten Zelle in Bezug auf ihre Tendenz zur Li-Abscheidung auf der Anode (Abbildung 3l).

1.5. Methodenverbesserung GD-OES Vergleich mit NDP und ICP-OES

Im Projektverlauf wurde am ZSW die GD-OES Methode verbessert. Die Verbesserung basiert auf einer Kalibrierung mit Hilfe von Ar-Linien, die mit der geräteinternen CCD-Kamera gemessen werden. Hierdurch konnte das preferential sputtering von Li berücksichtigt werden. Die Korrektur führte zu einer verbesserten Bestimmung der Li-Verteilung an der Anodenoberfläche im Fall von Li-Plating. Die vorherige Aussage, dass Li-Plating vor allem auf der Anodenoberfläche stattfindet wurde hiermit weiter bestätigt. NDP wurde in Zusammenarbeit dem assoziierten Projektpartner MLZ/TUM an der Neutronenquellen in Prag gemessen. Während bei NDP Neutronen mit der Probe interagieren und die entstehenden Teilchen detektiert werden, wird die Probe bei GD-OES ein Krater in die Probe mittels eines Ar-Plasmas gesputtert und die herausgeschleuderten Elemente mit optischer Spektroskopie (OES) ermittelt. Beide Methoden sind deshalb komplementär. Die Ergebnisse wurden als kooperatives Paper (MLZ/TUM, ZSW) beim J. Power Sources veröffentlicht [8].

1.6. Vermeidung/Verminderung von Li-Abscheidungen durch höhere Si-Gehalte bei gleicher Flächenkapazität

Am ZSW konnte im Projekt mit über 100 Messungen von Spannungsrelaxationskurven gezeigt werden, dass nach die Neigung zu Li-Plating bei 0°C mit zunehmendem Si-Gehalt der Anoden abnimmt (Abbildung 5). Dies ist wahrscheinlich auf die geringere Schichtdicke der Anoden zurückzuführen, da bei allen Zellen sehr ähnliche Flächenkapazität, N/P-Verhältnisse und Porositäten genutzt wurden.

	Graphite	SiG3.0	SiG3.5	SiG5.8	SiG20.8
0.1C					
0.2C					
0.33C	0.2h				
0.5C	0.66h	0.15h	0.12h		
1.0C	1.25h	0.39h	0.3h	0.22h	---
1.5C	0.8h	0.24h	0.18h	0.12h	---
2.0C	0.28h	0.075h	0.05h	---	---

Abbildung 5 Neigung von Vollzellen zu Li-Plating bei 0°C und unterschiedlichen Lade-C-Raten ermittelt aus Spannungsrelaxationskurven. Grün: kein Li-Plating, rot: Li-Plating. Die angegebenen Zeiten beziehen sich auf die Dauer der Re-Interkalation des Li-Platings. Reproduced from [9] with permission, CC-BY.

Im Projekt wurden diese Ergebnisse mit C-Ratentests (ZSW), Spannungskurven mittels REM-Messungen (ZSW, Abbildung 6 links), GD-OES (ZSW, Abbildung 6 rechts), und Auflichtmikroskopie (HSAA) verglichen, wobei sich ein konsistentes und reproduzierbares Gesamtbild ergab. Bei den Mikroskopischen Messungen wurden Li-Abscheidungen in Form von Dendriten nachgewiesen. Bei den GD-OES-Messungen wurde Li-Plating durch einen Li-Peak an der Oberfläche, der gemäß der

Methodenentwicklung für Si/Graphitanoden ausgewertet wird. Im Fall der Abwesenheit von Li-Plating ergeben sich deutlich niedrigere Li-Peaks an der Anodenoberfläche.

Diese Ergebnisse wurden als kooperatives Paper veröffentlicht (ZSW, HSAA) [9].

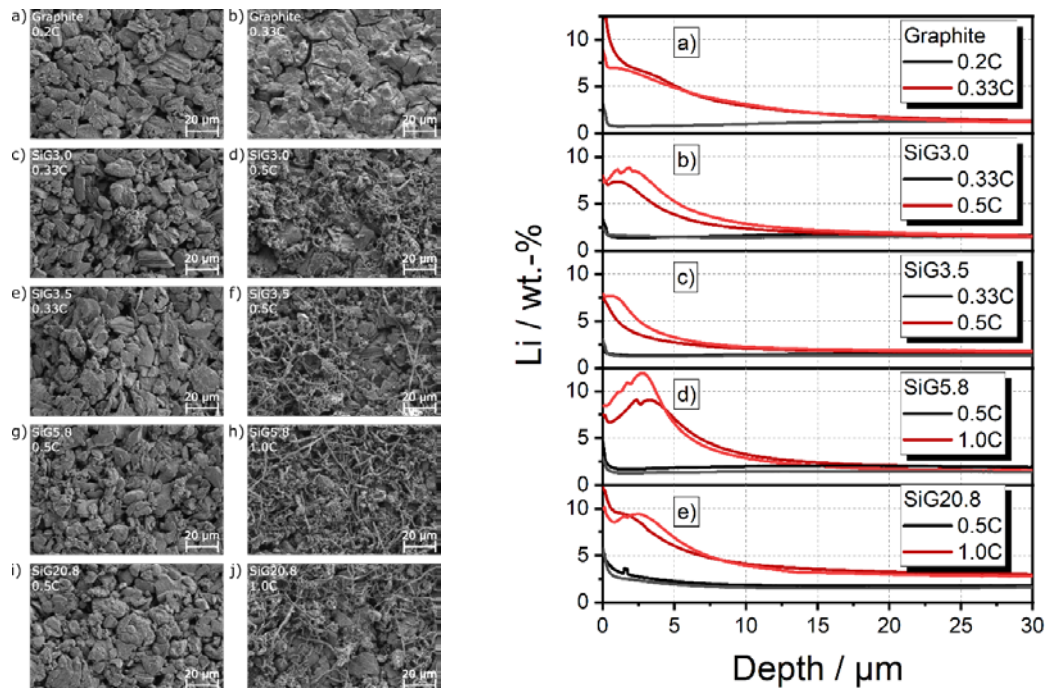


Abbildung 6 Links: REM-Messungen unterhalb (keine Dendriten) und oberhalb der kritischen C-Rate die zu Li-Plating (Dendriten) führt. Rechts: GD-OES-Messungen unterhalb (schwarze Kurven, kein Li-Peak) und oberhalb der kritischen C-Rate (rote Kurven, deutlicher Li-Peak). Die beiden Linien in der jeweils gleichen Farbe in (b) sind reproduzierte Messungen. Reproduced from [9] with permission, CC-BY.

1.7. Kurzzusammenfassung der Ergebnisse

Im Projekt wurden kommerzielle Benchmarkzellen beschafft und grundcharakterisiert. Die Benchmarkzellen enthielten eine Ni-reiche Kathode und eine Si-haltige Graphiteanode. Der Vergleich der Projektzellen mit 14 weiteren Zelltypen aus vorherigen Projekten in einem Diagramm [1] ergab einen deutlichen Mehrwert. Insgesamt kann man sagen, dass viele State-of-the-Art Zellen $\leq 4\%$ Si enthalten.

Am ZSW wurde im Projekt CharLiSiKo eine neue GD-OES basierte Methode zur Detektion von Li-Plating auf Si/Graphit-Anoden entwickelt [1]. Die Methode wurde anschließend weiter verbessert und mit der Methode NDP des assoziierten Projektpartners MLZ/TUM verglichen [8]. Die GD-OES-Methode wurde auch auf Pilotzellen angewendet um den Einfluss des Si-Gehalt auf die Neigung zu Li-Plating systematisch in Vollzellen zu untersuchen [9]. Ein höherer Si-Gehalt führt bei gleichen Anodenflächenkapazitäten zu dünneren Anodenbeschichtungen, die die Neigung zu Li-Plating vermindern, d.h. es kann schneller geladen werden ohne, dass Li-Plating auftritt [9].

1.8. Veröffentlichungen

Tabelle 2 Veröffentlichungen des ZSW im Projekt

Typ	Eingereicht/veröffentlicht bei	Titel
Paper	J. Electrochem. Soc. J. Electrochem. Soc. 169 (2022) 050533, 10.1149/1945-7111/ac70af [1]	Detection of Li deposition on Si/Graphite anodes from commercial Li-ion cells – A Post-Mortem GD-OES depth profiling study
Paper	J. Power Sources 549 (2022) 232129, 10.1016/j.jpowsour.2022.232129 [10]	Arrhenius Plots for Li-ion Battery Ageing as a Function of Temperature, C-rate, and Ageing State – An Experimental Study
Vortrag	GD-OES Anwendertagung 2022, Dresden	Detection of Li-plating on Si/graphite anodes with GD-OES
Poster	Metallographie-Tagung 2022, Saarbrücken	Image processing methods and light optical microscopy for in-situ quantification of chromatic change and anode dilation in Li-ion battery graphite anodes during (de-) lithiation
Vortrag	242nd ECS Meeting 2022, Atlanta	Detection of Li Deposition on Si/Graphite Anodes from Commercial Li-ion Cells – A Post-Mortem GD-OES Depth Profiling Study
Vortrag	242nd ECS Meeting 2022, Atlanta	Analysis of Graphite Lithiation Behaviour in Li-Ion Full Cells Using a Novel Cross-Sectional in Situ Optical Microscopy Method
Vortrag	242nd ECS Meeting 2022, Atlanta	Ageing Rate of Li-Ion Battery Cells As a Function of Temperature, C-Rate, and State of Health
Paper	J. Power Sources, J. Power Sources 556 (2023) 232391, 10.1016/j.jpowsour.2022.232391 , [11] Special issue in honor of E. Peled	Direct Observation of Internal Short Circuits by Lithium Dendrites in Cross-sectional Lithium-Ion in situ Full Cells
Paper	Praktische Metallographie 60 (2023), 3, 10.1515/pm-2022-1022 , [12]	Image processing methods and light optical microscopy for in-situ quantification of chromatic change and anode dilation in Li-ion battery graphite anodes during (de-) lithiation
Poster	AQua-Industrietag 2022, München	Characterization and General Trends of Li Deposition in Full Cells with Si-/Graphite Anodes
Poster	AQua-Industrietag 2022, München	In Situ Optische Mikroskopie in Vollzellen: Direkte Beobachtung von Lithium-Abscheidung und internen Kurzschlüsse durch Lithium Dendriten
Vortrag	AQua-Industrietag 2022, München	Zuverlässige Detektion von Lithiumabscheidungen auf Graphit- und

		Si/Graphitanoden mittels komplementären Methoden
Paper	J. Electrochem. Soc. 170 (2023) 060536, https://doi.org/10.1149/1945-7111/acdda3 , [9]	Onset shift of Li plating on Si/graphite anodes with increasing Si content
Poster	Kraftwerk Batterie 2023, Aachen	Direct Observations of Graphite Anode Lithiation and Internal Short Circuits by Li Metal Deposition using Cross-Sectional in situ Optical Microscopy in Li-Ion Full Cells
Vortrag	Kraftwerk Batterie 2023, Aachen	Characterization and general trends of Li deposition in full cells with Si/graphite anodes
Poster	UECT 2023, Ulm	Investigation of the Effect of Si Content on the Onset of Li Plating on Si/Graphite Anodes
Poster	UECT 2023, Ulm	Cross-Sectional In Situ Optical microscopy – A tool to investigate the (de-)lithiation of graphite anodes and Li deposition in Li-Ion full cells
Poster	UECT 2023, Ulm	Investigation of Cyclic Aging Temperatures Path Dependence for Second Life Applications of Li-Ion Batteries
Vortrag	International Workshop on the Characterization and Quantification of Lithium, from the Micro- to the Nano-Scale, from Mining to Energy 2023, Paris	Quantification of lithium in anodes of li-ion batteries using GD-OES
eingeladener Vortrag	International Battery Safety Workshop (IBSW), Ulm	Safety Behavior of Aged Li-ion Cells – Effects of main Aging Mechanism and Multi-Sensor Detection
eingeladener Vortrag	244 th ECS, Gothenburg, Schweden	Lithium Plating as a Critical Aging Mechanism in Lithium-Ion Batteries – Detection by Advanced Methods and Mitigation
Vortrag	74th Annual ISE Meeting, Lyon, Frankreich	Simulation of Li Plating in Si/Graphite Composite Electrodes
Paper	J. Electrochem. Soc. 171 (2024) 070503, https://dx.doi.org/10.1149/1945-7111/ad59c7 [13].	Lithium Redistribution within Silicon-Graphite Electrodes: Multi-method approach and method validation
Paper	J. Electrochem. Soc. 171 (2024) 070526, https://doi.org/10.1149/1945-7111/ad5ef8 [14].	Efficient workflows for detecting Li depositions in lithium-ion batteries
Paper	in progress	Multi-Method Lithium Plating Characterization of a Commercial 26 Ah Lithium-Ion Pouch Battery
Paper	J. Power Sources 594 (2024) 233972, https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233972 [8].	Observation of preferential sputtering of Si/graphite anodes from Li-ion cells by GD-OES and its validation by neutron depth profiling

Vortrag	AQua-Industrietag 2023, Ulm	Workflows zur Charakterisierung von Li-Abscheidungen auf Graphitanoden und Si/Graphit Kompositanoden
Poster	AQua-Industrietag 2023, Ulm	Investigation of the Effect of Si Content on the Onset of Li Plating on Si/Graphite Anodes
Poster	AQua-Industrietag 2023, Ulm	Cross-Sectional In Situ Optical microscopy – Investigation of the (de-)lithiation of graphite anodes and Li deposition in Li-ion full cells
Vortrag	MLZ User Meeting 2023, München	Charge Relaxation within Silicon/Graphite Anodes – A Multi-Method Study
Vortrag	MLZ User Meeting 2023, München	Neutron depth profiling and GD-OES as tools for characterization of Li plating in Si/graphite anodes from Li-ion battery cells
eingeladener Vortrag	AABC 2023, San Diego, USA	How Temperature Affects Safety and Lifetime of Li-Ion Batteries
Paper	J. Electrochem. Soc. 170 (2023) 110535, https://dx.doi.org/10.1149/1945-7111/ad0c65 , [15]	Multistep improvement of pilot-scale 21700 cells for increased fast-charging capability: Combining optimized electrolyte, cell design and fast-charging protocol
Paper	J. Power Sources 594 (2024) 233948, https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233948 [16]	Temperature-Driven Path Dependence in Li-Ion Battery Cyclic Aging
Poster	International Battery Safety Workshop (IBSW), Ulm	Exploring Safety and Critical Temperatures in Li-Ion Pouch Cells with Multi-Sensor Accelerating Rate Calorimetry Tests
Poster	Batterieforum 2024, Berlin	Cross-Sectional In Situ Optical Microscopy – A valuable tool to investigate (de-)lithiation characteristics of graphite electrodes in Li-ion full cells
Poster	Batterieforum 2024, Berlin	Cycling Temperature Path Optimization for Enhanced Second-Use Performance of Li-Ion Batteries
Poster	Batterieforum 2024, Berlin, 3. Posterpreis	Li-Plating – An Aging Mechanism to be avoided in 2nd-Life Applications
Vortrag	DPG-Tagung 2024, Berlin	Investigation of Li depth profiles in Si/graphite anodes from Li-ion battery cells via NDP and GD-OES
Vortrag	Kraftwerk Batterie 2024	Calendar aging behavior of Si/graphite anodes in Li-ion full cells
Vortrag	Kraftwerk Batterie 2024	An Efficient Workflow for Li-Plating Detection
Vortrag	Kraftwerk Batterie 2024	Operando and In Situ Study on the Charge Lithium Redistribution within Blended

		Silicon-Graphite Composite Electrodes in Li-Ion Full Cells.
Paper	J. Electrochem. Soc., J. Electrochem. Soc. 171 (2024) 010510, https://dx.doi.org/10.1149/1945-7111/ad1b7c [17]	Aging mechanism for calendar aging of Li-ion cells with Si/Graphite anodes
Paper	submitted	Exploring the inhomogeneous nature of Li intercalation and Li plating on graphite anodes – an experimental study using inert gas high-resolution light microscopy and colourimetric and machine learning based image analysis

Referenzen

- [1] M. Flügel, K. Richter, M. Wohlfahrt-Mehrens, T. Waldmann, Detection of Li Deposition on Si/Graphite Anodes from Commercial Li-Ion Cells: A Post-Mortem GD-OES Depth Profiling Study, J. Electrochem. Soc. 169 (2022) 050533. <https://doi.org/10.1149/1945-7111/ac70af>.
- [2] J.B. Quinn, T. Waldmann, K. Richter, M. Kasper, M. Wohlfahrt-Mehrens, Energy Density of Cylindrical Li-Ion Cells: A Comparison of Commercial 18650 to the 21700 Cells, J. Electrochem. Soc. 165 (2018) A3284–A3291. <https://doi.org/10.1149/2.0281814jes>.
- [3] K. Richter, T. Waldmann, M. Memm, M. Kasper, M. Wohlfahrt-Mehrens, Communication—Detection of Si Distribution in Si/C Composite Anodes by Glow Discharge Optical Emission Spectroscopy, J. Electrochem. Soc. 165 (2018) A3602–A3604. <https://doi.org/10.1149/2.0071816jes>.
- [4] K. Richter, T. Waldmann, M. Kasper, C. Pfeifer, M. Memm, P. Axmann, M. Wohlfahrt-Mehrens, Surface Film Formation and Dissolution in Si/C Anodes of Li-ion Batteries – A GD-OES Depth Profiling Study, J. Phys. Chem. C (2019) acs.jpcc.9b03873. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.9b03873>.
- [5] Lain, Brandon, Kendrick, Design Strategies for High Power vs. High Energy Lithium Ion Cells, Batteries 5 (2019) 64. <https://doi.org/10.3390/batteries5040064>.
- [6] N. Ghanbari, T. Waldmann, M. Kasper, P. Axmann, M. Wohlfahrt-Mehrens, Inhomogeneous Degradation of Graphite Anodes in Li-Ion Cells: A Postmortem Study Using Glow Discharge Optical Emission Spectroscopy (GD-OES), J. Phys. Chem. C 120 (2016) 22225–22234. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b07117>.
- [7] K. Richter, T. Waldmann, N. Paul, N. Jobst, R. Scurtu, M. Hofmann, R. Gilles, M. Wohlfahrt-Mehrens, Low-Temperature Charging and Aging Mechanisms of Si/C Composite Anodes in Li-Ion Batteries: An Operando Neutron Scattering Study, ChemSusChem 13 (2020) 529–538. <https://doi.org/10.1002/cssc.201903139>.
- [8] I. Pivarníková, M. Flügel, N. Paul, A. Cannavo, G. Ceccio, J. Vacík, P. Müller-Buschbaum, M. Wohlfahrt-Mehrens, R. Gilles, T. Waldmann, Observation of preferential sputtering of Si/graphite anodes from Li-ion cells by GD-OES and its validation by neutron depth profiling, J. Power Sources 594 (2024) 233972. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233972>.
- [9] M. Flügel, M. Bolsinger, M. Marinaro, V. Knoblauch, M. Hölzle, M. Wohlfahrt-Mehrens, T. Waldmann, Onset Shift of Li Plating on Si/Graphite Anodes with Increasing Si Content, J. Electrochem. Soc. 170 (2023) 060536. <https://doi.org/10.1149/1945-7111/acdda3>.
- [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] C. Hogrefe, T. Waldmann, M. Hölzle, M. Wohlfahrt-Mehrens, Direct observation of internal short circuits by lithium dendrites in cross-sectional lithium-ion in situ full cells, *J. Power Sources* 556 (2023) 232391. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2022.232391>.
- [12] A. Jansche, S. Desapogu, C. Hogrefe, A.K. Choudhary, F. Trier, A. Kopp, C. Weisenberger, T. Waldmann, M. Wohlfahrt-Mehrens, T. Bernthaler, G. Schneider, Image processing methods and light optical microscopy for in-situ quantification of chromatic change and anode dilation in Li-ion battery graphite anodes during (de-)lithiation, *Pract. Metallogr.* 60 (2023) 148–170. <https://doi.org/10.1515/pm-2022-1022>.
- [13] C. Hogrefe, N. Paul, L. Boveleth, M. Bolsinger, M. Flügel, T. Danner, A. Latz, R. Gilles, V. Knoblauch, M. Wohlfahrt-Mehrens, M. Hölzle, T. Waldmann, Lithium Redistribution Mechanism within Silicon-Graphite Electrodes: Multi-Method Approach and Method Validation, *J. Electrochem. Soc.* 171 (2024) 070503. <https://doi.org/10.1149/1945-7111/ad59c7>.
- [14] T. Waldmann, C. Hogrefe, M. Flügel, I. Pivarníková, C. Weisenberger, E. Delz, M. Bolsinger, L. Boveleth, N. Paul, M. Kasper, M. Feinauer, R. Schäfer, K. Bischof, T. Danner, V. Knoblauch, P. Müller-Buschbaum, R. Gilles, A. Latz, M. Hölzle, M. Wohlfahrt-Mehrens, Efficient Workflows for Detecting Li Depositions in Lithium-Ion Batteries, *J. Electrochem. Soc.* 171 (2024) 070526. <https://doi.org/10.1149/1945-7111/ad5ef8>.
- [15] C. Hogrefe, M. Hölzle, M. Wohlfahrt-Mehrens, T. Waldmann, Multistep Improvement of Pilot-Scale 21700 Cells for Increased Fast-Charging Capability: Combining Optimized Electrolyte, Cell Design and Fast-Charging Protocol, *J. Electrochem. Soc.* 170 (2023) 110535. <https://doi.org/10.1149/1945-7111/ad0c65>.
- [16] 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>.
- [17] K. Bischof, M. Flügel, M. Hölzle, M. Wohlfahrt-Mehrens, T. Waldmann, Aging Mechanism For Calendar Aging of Li-Ion Cells With Si/Graphite Anodes, *J. Electrochem. Soc.* 171 (2024) 010510. <https://doi.org/10.1149/1945-7111/ad1b7c>.