

Sachbericht zum Verwendungsnachweis

Teil 1 – Kurzbericht

Vorhabenbezeichnung: AURRELIA – Optimierung nasser Aufbereitungstechniken zur Rückgewinnung recyclingfähiger Fraktionen aus Lithium-Alt Batterien – TV 2: Entwicklung eines mechanischen Aufbereitungsprozesses von Lithium-Alt Batterien im nassen Milieu zur Optimierung der Verwertung der resultierenden Aufbereitungsfraktionen	
Zuwendungsempfänger: FH Münster, Institut für Infrastruktur, Wasser, Ressourcen, Umwelt (IWARU)	Förderkennzeichen 03XP0351B
Projektleiter*in Prof. Dr.-Ing. Sabine Flamme Dipl.-Biol. Sigrid Hams Moritz Petzold, M. Sc.	Laufzeit 01.01.2021 – 31.12.2023

1. Ursprüngliche Aufgabenstellung

Das Forschungsvorhaben AURRELIA hatte das Ziel, den Recyclingprozess von Post-Consumer Lithium-Ionen-Batterien (LIB) durch die Entwicklung geeigneter Verfahren entlang der Prozesskette von der mechanischen bis zur hydrometallurgischen Aufbereitung signifikant zu optimieren. Dabei sollte ein möglichst großer Anteil der Batteriebestandteile einem Recycling zugänglich gemacht werden. Zentrale Zielsetzung des Vorhabens war die recyclinggerechte und wirtschaftliche Aufbereitung der LIB, mittels geeigneter Zerkleinerungs- und weiterer Aufbereitungsverfahren. LIB (Zellen und Module) wurden (ggf. nach vorheriger Demontage) mit optimierter Schreddertechnik im nassen Milieu zerkleinert und anschließend in feste und flüssige Phasen separiert. So sollte eine stoffstromspezifische Weiterbehandlung der Materialströme und damit eine umfassende Rückgewinnung der LIB-Komponenten möglich werden. Im Vordergrund stand dabei insbesondere die Vermeidung von Lithiumverlusten.

Das IWARU verfolgte in dem entsprechenden Teilvorhaben folgende Ziele:

- Entwicklung eines mechanischen Aufschlusses von LIB-Modulen und -Zellen im nassen Milieu
- Adaption nassmechanischer Separationsprozesse zur Trennung der Feinfraktion (v. a. Aktivmasse) und groben Feststoffe; Erprobung und Adaption weiterer mechanischer Aufbereitungsprozesse für die grobe Feststofffraktion
- Optimierung des mechanischen Aufschlusses in Bezug auf die nachgelagerte Feststoffseparation und weiterer Recyclingschritte (z. B. Hydrometallurgie, Extraktionsverfahren)
- Verringerung der mit dem Aufschluss verbundenen Sicherheitsrisiken

2. Ablauf des Vorhabens

Die Schwerpunkte des IWARU im Rahmen von AURRELIA waren der mechanische Aufschluss im nassen Milieu sowie die anschließende nassmechanische Aufbereitung. Dement-

sprechend wurde zu Beginn des Projektes eine entsprechende Zerkleinerungseinheit ausgelegt und beschafft. Hierzu wurden im Rahmen erster Vorversuche bei Herstellern zunächst erzeugte Schredderfraktionen analysiert und potenzielle, nassmechanische Aufbereitungsverfahren konzeptioniert. Nach Beschaffung, erfolgreicher Installation und Inbetriebnahme in Q4/2021 wurde Meilenstein M1 (Installation des Zerkleinerungsaggregates) erreicht. Im Rahmen der Arbeitspakete 1 und 2 wurden weitere Aufbereitungs- und Zerkleinerungsversuche durchgeführt, wie in Tabelle 1 dargestellt. Zum Projektabschluss fand mit allen beteiligten Partnern im Rahmen von AP 6 ein Scale-Up auf allen Prozessebenen statt. Anschließend wurde dies in ein Ablaufschema überführt und ökonomisch bewertet.

Tabelle 1: Übersicht über die im Projekt erfolgten Versuche mit Gerätebatterien sowie Modulen aus Elektrofahrzeugen (EV-Module)

Prozessschritt	Beschreibung / Zielstellung	Material
Vorversuche		
Zerkleinerung	Vergleich unterschiedlicher Austragssiebe	EV-Module, Gerätebatterien
Siebung	Nassmechanische Aufbereitung von LIB	
1. Ermittlung der Zusammensetzung		
Zerkleinerung	Analyse der zerkleinerten LIB-Fractionen	EV-Module, Gerätebatterien
Abtrennung der groben Feststoffe		
Zerkleinerung, Waschen, Siebung	Auswirkungen unterschiedlicher Fest-Flüssig-Verhältnisse bei der Zerkleinerung auf die anschließende Abtrennung der Feinfraktion	EV-Module
2. Iterative Prozessoptimierung von Zerkleinerung und Abtrennung		
Zerkleinerung	Kreislaufführung des Prozesswassers (3 bzw. 6 Zyklen)	EV-Module
	Auswirkung der zweistufigen Zerkleinerung	
	Auswirkung des Modulgehäuses auf den Erfolg der Zerkleinerung	
3. Aufbereitungsversuche der groben Feststoffe		
Schwimm-Sink-Trennung	Separation von Kunststoff- und Metallpartikeln	EV-Module
Windsichtung		

3. Wesentliche Ergebnisse

Der Aufschluss von LIB-Modulen aus der Elektromobilität funktioniert vor allem bei kleinen Austragssieben (15, 20 mm) sowie bei Zellgehäusen, welche nicht prismatisch aufgebaut sind. Hierbei konnte der zurückbleibende Anteil der Materialverbunde im Schredderoutput auf 4 bzw. 8 Massen-% reduziert werden. Weiter kann mittels mehrstufiger, nassmechanischer Aufbereitung über 80 Massen-% der Aktivmaterialien zurückgewonnen werden ohne eine thermische Vorbehandlung vorzuschalten. Damit verbundene Sicherheitsrisiken, in Form von austretenden Gasen oder Brandpotentialen, wurden durch die angewendete Nass-Zerkleinerung und die installierte Aktivkohlefilterung der Abluft maßgeblich reduziert. Über zusätzliche Wasch- und Siebprozesse konnten mind. 80 Massen-% der Schwarzmasse zurückgewonnen werden. Weiter wurde mittels Schwimm-Sink-Trennung eine Separation der Grobfraktion in Kunststoff- und Metallpartikeln realisiert.

Sachbericht zum Verwendungsnachweis

Teil 2 – Eingehende Darstellung

Vorhabenbezeichnung: AURRELIA – Optimierung nasser Aufbereitungstechniken zur Rückgewinnung recyclingfähiger Fraktionen aus Lithium-Alt Batterien – TV 2: Entwicklung eines mechanischen Aufbereitungsprozesses von Lithium-Alt Batterien im nassen Milieu zur Optimierung der Verwertung der resultierenden Aufbereitungsfraktionen	
Zuwendungsempfänger: FH Münster, Institut für Infrastruktur, Wasser, Ressourcen, Umwelt (IWARU)	Förderkennzeichen 03XP0351B
Projektleiter*in Prof. Dr.-Ing. Sabine Flamme Dipl.-Biol. Sigrid Hams Moritz Petzold, M. Sc.	Laufzeit 01.01.2021 – 31.12.2023

1. Durchgeführte Arbeiten und erzielte Ergebnisse des Teilvorhabens

I. Hintergrund

Das Forschungsvorhaben AURRELIA hatte das Ziel, den Recyclingprozess von Post-Consumer Lithium-Ionen-Batterien (LIB) durch die Entwicklung geeigneter Verfahren entlang der Prozesskette von der mechanischen bis zur hydrometallurgischen Aufbereitung signifikant zu optimieren. Dabei sollte ein möglichst großer Anteil der Batteriebestandteile einem Recycling zugänglich gemacht werden. Mit den aktuellen Aufbereitungsverfahren wie z. B. pyrometallurgischen Verfahren ohne mechanische Vorbehandlung, wird Lithium, welches in die Schlacke überführt wird, i. d. R. nicht zurückgewonnen. Eine Lithium-Rückgewinnung aus den Schlacken ist aufwendig und wird bislang kaum bzw. nicht umgesetzt. Auch die Kunststoffe aus den Modulen und der Elektrolyt aus den Batteriezellen können so nicht recycelt werden, da sie im Pyrolyseprozess zerstört werden. Im Sinne eines Zero-Waste-Prozesses, aber auch um die Verwertungsquoten der EU-Batterieverordnung¹ (Lithium: 50 Massen-% bis 2027; 80 Massen-% bis 2031) zu erreichen, sollten in dem Projekt hohe Ausbeuten und Reinheiten der gewonnenen Produkte erzielt werden. Um die o. g. Verwertungsquote für Lithium, was grundsätzlich wasserlöslich ist, bis 2031 zu erreichen, wurde im vorliegenden Teilprojekt ein mechanischer Aufbereitungsansatz im nassen Milieu angewendet. Zentrale Zielsetzung des Vorhabens war die recyclinggerechte und wirtschaftliche Aufbereitung der LIB, mittels geeigneter Zerkleinerungs- und weiterer Aufbereitungsverfahren.

¹ **Europäische Union (2023):** Verordnung (EU) 2023/1542 des Europäischen Parlaments und des Rates vom 12. Juli 2023 über Batterien und Altbatterien, zur Änderung der Richtlinie 2008/98/EG und der Verordnung (EU) 2019/1020 und zur Aufhebung der Richtlinie 2006/66/EG, 28.07.2023 (Amtsblatt der Europäischen Union; L 191)

II. Aufgabenstellung und Vorgehen

Mit dem Teilvorhaben B des IWARU wurden folgende Ziele zur Optimierung der Verwertung, der aus einer mechanischen Aufbereitung von Lithium-Alt-Batterien im nassen Milieu resultierenden Aufbereitungsfraktionen, verfolgt:

- Entwicklung eines mechanischen Aufschlusses von LIB-Modulen und -Zellen im nassen Milieu
- Adaption nassmechanischer Separationsprozesse zur Trennung der Feinfraktion (v. a. Aktivmasse) und groben Feststoffe; Erprobung und Adaption weiterer mechanischer Aufbereitungsprozesse für die grobe Feststofffraktion
- Optimierung des mechanischen Aufschlusses in Bezug auf die nachgelagerte Feststoffseparation und weiterer Recyclingschritte (z. B. Hydrometallurgie, Extraktionsverfahren)
- Verringerung der mit dem Aufschluss verbundenen Sicherheitsrisiken

Die nachgelagerten Prozesse, wie u. a. die Hydrometallurgie sowie die Rückgewinnung der organischen Bestandteile und des Lithiums aus dem Prozesswasser wurden durch die Projektpartner der RWTH Aachen im Teilvorhaben A durchgeführt.

Die Bearbeitung des Gesamtprojektes erfolgt in sieben Arbeitspaketen (AP), wobei im Teilvorhaben B durch das IWARU folgende AP und Unterarbeitspakete (UAP) bearbeitet wurden:

AP 1: Implementierung der mechanischen Aufbereitung von LIB im nassen Milieu und Abtrennung der groben Feststofffraktion

UAP 1.1: Auswahl, Beschaffung und Aufbau eines geeigneten Zerkleinerungsaggregats

UAP 1.2: Konzeptionierung und Durchführung von Zerkleinerungsversuchen im nassen Milieu

UAP 1.3: Abtrennung der groben Feststofffraktion von Flüssigkeit und der feinen Feststofffraktion

UAP 1.4: Iterative Prozessoptimierung der Zerkleinerung und Abtrennung der groben Feststofffraktion

AP 2: Recycling der groben Feststofffraktion

UAP 2.1: Ermittlung der Zusammensetzung und Ableitung weiterer Aufbereitungsschritte zum Recycling der groben Feststofffraktion aus LIB

UAP 2.2: Durchführung von Aufbereitungsversuchen

UAP 2.3: Bewertung der aufbereiteten Teilfraktionen im Hinblick auf ein hochwertiges Recycling und Ableitung von Handlungsempfehlungen

AP 6: Implementierung eines Scale-Ups und Ableitung eines Gesamtkonzeptes zum zukünftigen Lithium-Ionen-Batterierecycling im Pilotmaßstab

UAP 6.2: Durchführung eines Scale-Ups auf allen Prozessebenen von der Aufbereitung bis zum Recycling

UAP 6.3: Ableitung eines Gesamtkonzeptes für die Umsetzung eines ganzheitlichen industriellen Lithium-Batterierecyclingverfahrens

Zu Beginn des Projektes wurde ein geeignetes Zerkleinerungsaggregat angeschafft und anschließend die Arbeitspakete und Aufgabenstellung im Rahmen folgender Versuche bearbeitet:

Im **Arbeitspaket 1** war eine geeignete mechanische Aufbereitung von LIB im nassen Milieu und nassmechanische Prozessschritte zur Abtrennung der groben Feststofffraktion zu entwickeln und zu überprüfen. Ziel war es, die Schwarzmasse möglichst vollständig mit in einer sogenannten Feinfraktion anzureichern und die groben Feststoffe u. a. mittels Dichtentrennung materialspezifisch voneinander zu trennen.

Hierzu wurden u. a. die Größe der Sieblochung des Austragssiebes oder auch die Inputmenge an Frischwasser variiert. Weiterhin wurden verschiedene mechanische Verfahren (wie z. B. Nass-Siebung, Schwimm-Sink-Trennung, Waschung oder Trocken-Siebung) zur Abtrennung der groben Feststofffraktion von der Flüssigkeit sowie der feinen Feststofffraktion untersucht.

Zentrale Arbeiten im **Unterarbeitspaket (UAP) 1.1** waren **Auswahl, Beschaffung, Aufbau und Inbetriebnahme einer geeigneten Zerkleinerungseinheit** für Batteriemodule und -zellen im nassen Milieu. Hierbei waren zentrale Herausforderungen, wie die Komplexität und die Gefahren, die mit den eingesetzten Materialien und der Konstruktion der LIB verbunden sind, zu berücksichtigen, z. B.:

- Brand- und Explosionsgefahr während der Zerkleinerung durch die Reaktion von Lithium mit Sauerstoff oder den niedrigen Flammpunkten einzelner Elektrolytbestandteile
- Freisetzung von gefährlichen Stoffen, z. B. organische Carbonate aus dem Elektrolyten
- Komplexe Materialstruktur: LIB bestehen aus vielen unterschiedlichen Materialien, welche in kompakten Verbunden in den Zellen und Modulen verbaut sind
- Materialanforderungen: Abrasive Materialien, wie z. B. Edelstahl, organische Carbonate, benötigen robuste und verschleißfeste Komponenten
- Optimale Vorbereitung des Outputs für die weiteren Aufbereitungs- und Recyclingprozesse

In Zusammenarbeit mit der Abteilung für Arbeits-, Gesundheits- und Umweltschutz der FH Münster wurde zusätzlich ein Sicherheitskonzept für den Betrieb des Schredders erarbeitet, bei dem die Schwerpunkte auf der Brand- und Explosionsgefahr sowie dem Arbeitsschutz lagen. Während der Zerkleinerung könnten potenziell gefährliche Stoffe (wie z. B. HCl, HF, CO oder flüchtige Elektrolytbestandteile) freigesetzt werden.

Im **UAP 1.2** wurden auf Grundlage der Vorversuche mit verschiedenen LIB-Arten (LIB aus PKW, Powertools und Handys/Laptops; vgl. Abbildung 1) erste Erfahrungen mit der Zerkleinerung, der anschließenden Nass-Siebung und der weitergehenden Aufbereitung der Grobfraktion gemacht. Hierbei wurden folgende Parameter und Einflussfaktoren mit dem Ziel des optimalen Aufschlusses untersucht und variiert:

- Inputspezifische Parameter:
 - Bauform der Batterie: Module (aus: PKW, Powertools, Laptops) und Zellen (Handys)
 - Bauformen der Zellen: zylindrisch, prismatisch, Pouch
- Schredderspezifische Parameter, z. B.:
 - Lochweite des Austragssiebs: 15 / 20 / 30 mm (→ Variation der Korngröße des Outputs)



Abbildung 1: Input bei den Vorversuchen (v.l.n.r.: PKW-Modul, Powertools, Akkus von Handys/Laptops)

Neben dem vollständigen mechanischen Aufschluss der LIB, sollte eine möglichst umfassende Abtrennung der Feinfraktion (v. a. Schwarzmasse) von den groben Feststoffen, insbesondere der Aluminium- und Kupferfolien, erfolgen (vgl. auch UAP 1.3). Bei dem Aufschluss war zudem eine Dissipation feiner Folienfragmente sowie Einschlüsse der Schwarzmasse in den Folien möglichst vollständig zu vermeiden.

Zur **Abtrennung der groben Feststofffraktion von der Flüssigphase und der Feinfraktion (UAP 1.3)** erfolgte nach der Nass-Zerkleinerung der Batterien eine Nass-Siebung bei 1 mm. Zusätzlich sollte dabei die Feinfraktion (< 1 mm, v. a. Schwarzmasse) möglichst vollständig in die flüssige Phase gelangen. Für eine weitergehende Aufbereitung der feinen (< 1 mm) und groben (> 1 mm) Feststoffe waren diese möglichst umfassend voneinander zu trennen. Zur Verbesserung der Qualität der Grobfraktion wurden nassmechanische Versuche zur Optimierung der Schwarzmasse-Abtrennung (< 1 mm) durchgeführt (vgl. Abbildung 2).

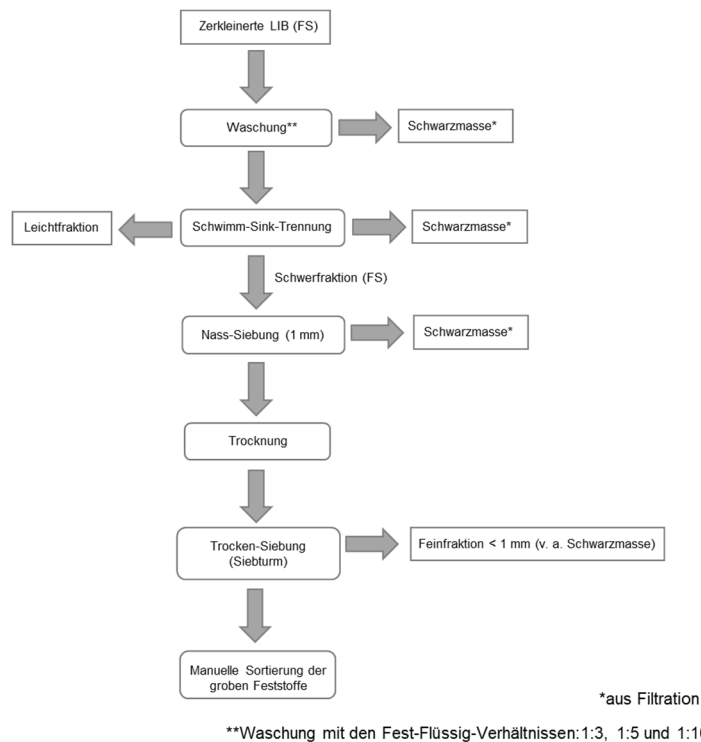


Abbildung 2: Fließbild der Versuchsdurchführung zur Abtrennung der groben Feststoffe von der Flüssigphase und der Feinfraktion mit ca. 13 kg EV-Module bei 20 mm Austragssieb

Hierzu wurde ein Waschprozess (zur Abtrennung von Schwarzmasse) mit einer Schwimm-Sink-Trennung (zur Abtrennung von Separatorfolien) und einer Nass-Siebung (zur weiteren

Aufreinigung der Grobstoffe) kombiniert. Jeder Aufbereitungsschritt wurde separat bewertet, indem das Prozesswasser jedes Aufbereitungsschrittes erfasst sowie filtriert und anschließend die Masse der abgetrennten Schwarzmasse bestimmt wurde. Die erzeugte Grobfraction (> 1 mm) wurde zusätzlich getrocknet, sowie anschließend erneut bei 1 mm gesiebt. Die dabei abgetrennte Feinfraction wurde als Indikator für die anhaftende Schwarzmasse genutzt. Um die Auswirkungen des Zell- bzw. Modulgehäuses auf den Zerkleinerungsvorgang und die nachfolgende Aufbereitung abschätzen zu können, wurden weitere Zerkleinerungsversuche mit LIB-Modulen aus Elektrogabelstaplern durchgeführt. Diese haben ein Gewicht von ca. 4,3 kg, bestehen aus mehreren, verschalteten Pouch-Zellen, welche in ein Gehäuse aus Hartkunststoff integriert werden. Diese wurden einstufig bei einer Sieblochung von 20 mm zerkleinert. Nach der Installation des Nass-Schredders wurden zur Auslegung einer Abluftreinigung Abluftmessungen während des Schredderbetriebs durch das Institut für Partikeltechnik (iPAT) der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt. Hierdurch wurden Art und Konzentration eventuell enthaltener Gefahrstoffe erkannt und die Abluftreinigung entsprechend ausgelegt, beschafft und installiert. Die Messungen erfolgten mittels FTIR²-Spektroskopie während der Zerkleinerung eines NMC811 EV-LIB Moduls (Masse: 13 kg). Untersucht wurden hier insbesondere Gase wie Chlorwasserstoff (HCl), Fluorwasserstoff (HF) und Kohlenmonoxid (CO) sowie flüchtige Elektrolytbestandteile (organische Carbonate, EC³, EMC⁴ und DMC⁵).

Im **Unterarbeitspaket 1.4** wurden die **Zerkleinerung und die Abtrennung der groben Feststofffraktion iterativ optimiert**. Hierzu wurde v. a. die Kreislaufführung des Prozesswassers sowie die Auswirkungen des Zell- bzw. Modulgehäuses und die zweistufige Zerkleinerung fokussiert.

Nach Implementierung des nass-mechanischen Aufschlusses wurde in **Arbeitspaket 2** die Optimierung der Aufbereitung der groben Feststofffraktion mit Hilfe verschiedener, mechanischer Trennverfahren untersucht. Im Fokus waren dabei die nass-mechanischen Trennverfahren, wie z. B. Nass-Siebung oder Schwimm-Sink-Trennung. Hierfür wurden nassmechanisch aufbereitete grobe Feststoffe (≤ 15 mm bzw. ≤ 30 mm) aus den Vorversuchen getrocknet, auf ihre Korngrößenverteilung untersucht (vgl. Abbildung 10) und die einzelnen Siebfractionen manuell nachsortiert (Sortierfractionen: Kupferfolie, Aluminiumfolie, Aluminiumgehäuse, Separatorfolie, Verbunde, Hartkunststoffe, Eisen/Stahl, Sonstiges, Feinfraction, **UAP 2.1**). Anschließend wurde bei 2 mm mittels Nasssiebung das Prozesswasser inkl. Schwarzmasse abgetrennt. Die groben Feststoffe wurden getrocknet und anschließend gemäß dem o. g. Konzept analysiert. In einem weiteren Schritt wurden Versuche zur weitergehenden Aufbereitung grober Feststofffraktionen mit dem Ziel durchgeführt, möglichst sortenreine Einzelfractionen von Metallfolien, Polyolefin-Folien und Gehäuseteilen zu erreichen (**UAP 2.2**). Aufgrund der Dichteunterschiede von Kunststoffen sowie Wasser und, da die vorherigen mechanischen Aufbereitungsschritte bereits im nassen Milieu stattfanden wurde die Schwimm-Sink-Trennung als dichtebasiertes, mechanisches Trennverfahren genutzt.

² FTIR: Fourier-Transform-Infrarotspektroskopie

³ EC: Ethylencarbonat

⁴ EMC: Ethylmethylcarbonat

⁵ DMC: Dimethylcarbonat

Tabelle 1: Materialdichte der unterschiedlichen Bestandteile von LIB im Vergleich zu Wasser

Stoff	Dichte (g/cm ³ , bei 20 °C)
Polyamid (PA 6)	1,14
Polyethylen (PE)	0,93
Polypropylen (PP)	0,91
Aluminium (Al)	2,70
Kupfer (Cu)	8,96
Wasser	1,00

Hierbei ist eine Abtrennung der Separatorfolien als Schwimmschicht zu erwarten, während alle weiteren Fraktionen sich eher als Sinkschicht am Boden des Behältnisses absetzen sollten. Sollen Hartkunststoffe ebenfalls als Schwimmschicht ausgetragen werden, so ist die Dichte des Trennmediums (hier: Wasser), z. B. durch Zugabe von z. B. Natriumpolywolframat⁶, zu erhöhen. Für die Schwimm-Sink-Versuche wurde ein rechteckiges 50 Liter-Behältnis (l x b x h: ca. 60 cm x 30 cm x 30 cm, Grundfläche: 0,18 m²) verwendet, in welches Luftströmsteine zur Flotationsunterstützung integriert wurden. Jeder Versuch wurde mit einer Probengröße von 50 g und in dreifacher Ausführung durchgeführt.

Im Rahmen der dichtebasierten Trennung von Wertstoffen werden häufig auch einstufige oder mehrstufige Windsichter (Zick-Zack-Windsichter) verwendet. Da es sich hierbei um ein trocken-mechanisches Trennverfahren handelt, wurden die zu trennenden Materialfraktionen zunächst im Trockenschrank bei 70 °C für 24 Stunden getrocknet. Für die Untersuchungen wurden Proben von ca. 1 kg verwendet. Die aufgeschlossene Materialfraktion wurde ungesiebt (Kornbandbreite 2 – 20 mm) bei acht verschiedenen Luftgeschwindigkeiten (3,3 bis 19,2 m/s) in einem Laborwindsichter (Modell Labor ZZ Sichter LZS 80x120 der Fa. JÖST) aufbereitet. Zielstellung hierbei war eine kaskadenartige Ausbringung der massiven Gehäuseteile und eine anschließende Trennung von Metall- und Kunststofffolien.

Im Rahmen des **Arbeitspakets 6** wurde ein **Scale-Up aller Prozessschritte** durchgeführt, um ein **Gesamtkonzept für die mechanische Aufbereitung ableiten zu können**. Neben einer technischen Bewertung erfolgte auch eine ökonomische Bewertung auf Basis der „Total Cost of Ownership“-Methode⁷ (TCO). Mit der TCO-Methode können die Gesamtkosten eines Produktes oder einer Dienstleistung über den gesamten Lebenszyklus, einschließlich Anschaffung, Betrieb, Wartung, Reparatur, Energieverbrauch und Entsorgung, bewertet werden. Ziel ist es, eine fundierte Entscheidungsgrundlage zu schaffen, indem alle relevanten Kosten transparent gemacht werden.

Alle im Projekt durchgeführten Versuche sind in Tabelle 2 zusammengefasst.

⁶ **Kamps, S. (2019)**: Feststoffe in Lösung, online verfügbar unter: www.heavy-liquid.com/wp-content/uploads/2019/06/NachrChem_2019_06_S44-45.pdf, zuletzt aufgerufen am 17.06.2024

⁷ **Ellram, L. M.; Siferd, S. P. (1998)**: Total cost of ownership: A key concept in strategic cost management decisions, Journal of Business Logistics, 19, 1, ABI/INFORM Global, S. 55.

Tabelle 2: Übersicht über die im Projekt durchgeführten Versuche mit Gerätebatterien sowie Modulen aus Elektrofahrzeugen (EV-Module)

Prozessschritt	Beschreibung / Zielstellung	Material
Vorversuche		
Zerkleinerung	Vergleich unterschiedlicher Austragsiebe	EV-Module,
Siebung	Nassmechanische Aufbereitung von LIB	Gerätebatterien
1. Ermittlung der Zusammensetzung		
Zerkleinerung	Analyse der zerkleinerten LIB-Fractionen	EV-Module, Gerätebatterien
Abtrennung der groben Feststoffe		
Zerkleinerung, Waschen, Siebung	Auswirkungen unterschiedlicher Fest-Flüssig-Verhältnisse bei der Zerkleinerung auf die anschließende Abtrennung der Feinfraktion	EV-Module
2. Iterative Prozessoptimierung von Zerkleinerung und Abtrennung		
	Kreislaufführung des Prozesswassers (3 bzw. 6 Zyklen)	
Zerkleinerung	Auswirkung der zweistufigen Zerkleinerung	EV-Module
	Auswirkung des Modulgehäuses auf den Erfolg der Zerkleinerung	
3. Aufbereitungsversuche der groben Feststoffe		
Schwimm-Sink-Trennung	Separation von Kunststoff- und Metallpartikeln	EV-Module
Windsichtung		

III. Ergebnisse

• Unterarbeitspaket 1.1

Für eine optimale Auslegung der Zerkleinerungseinheit (Unterarbeitspaket 1.1) und die notwendige Ausschreibung, erfolgte zunächst eine Recherche zu möglichen und bereits erprobten Schreddertechnologien für die Zerkleinerung von Batteriemodulen. Hierbei wurden auch die Erfahrungen aus ähnlich gelagerten FE-Projekten (wie z. B. „LithoRec II“) berücksichtigt. Es stellte sich heraus, dass bislang ausschließlich Rotorscheren eingesetzt wurden⁸. Beim Vergleich der verwendeten Rotorscheren, d. h. schneidenden Aggregaten, zeigten radiale Rotorscheren die besten Ergebnisse. Hinsichtlich der Wahl des Siebeinsatzes im Schredder ist die gewählte Maschenweite relevant; es ist jedoch unerheblich, ob die Zerkleinerung zweistufig (z. B. 40 mm, 20 mm) oder einstufig (20 mm) durchgeführt wird. Auf Basis der vorliegenden Erfahrungen und Erkenntnisse sind für eine Batteriezerkleinerung somit insbesondere radiale Rotorscheren geeignet, die mit folgenden Komponenten ausgestattet werden sollten:

- Pumpen und Auffangmöglichkeiten für das Prozesswasser
- Gasfassung und -reinigungsaggregate (z. B. für organische Lösemittel und HF)
- Sicherheitseinrichtungen (z. B. Explosionsschutz, Atmosphärenüberwachung)

Für die Beschaffung der Zerkleinerungseinheit wurde eine Leistungsbeschreibung mit Mindestanforderungen an den Schredder erarbeitet (siehe Tabelle 3):

⁸ Kwade, A.; Diekmann, J. (Hrsg.) (2018): Recycling of Lithium-Ion Batteries - The LithoRec Way, Sustainable Production, Life Cycle Engineering and Management, 1. Aufl., Springer International Publishing, Cham, 2018; ISBN: 978-3-319-70571-2

Tabelle 3: Anforderungen an die Zerkleinerungseinheit gemäß der Ausschreibung

Parameter	Mindestanforderung
Input	<ul style="list-style-type: none"> • Lithium-Ionen-Batterien: Module, Zellen; u. a. EV-Module <ul style="list-style-type: none"> ○ Zustand: entladen, teilentladen und geladen ○ Gehäuse: Aluminium, Kunststoff, Stahl ○ Zellformen: • Durchsatz: ca. 300 kg/h • Zugabe von Flüssigkeit (Frisch-/Prozesswasser, ggf. Lauge)
Einwellen-Zerkleinerer (z. B. radiale Rotorschere)	<ul style="list-style-type: none"> • massive Ausführung aus Stahlplatten • Schneidwerksöffnung <ul style="list-style-type: none"> ○ Länge: 550 - 650 mm, ○ Breite: 600 - 700 mm • Rotor-Durchmesser: 300 - 350 mm • Siebe: austauschbar, Durchmesser 20 und 40 mm • fest verkabelt und betriebsbereit • inkl. „Not-Aus-Schalter“ • Außenmaße der Maschine <ul style="list-style-type: none"> ○ Höhe: max. 3.000 mm ○ Breite: max. 3.000 mm ○ Länge: max. 3.000 mm
Aufgabetrichter	<ul style="list-style-type: none"> • wasserundurchlässige Stahlblechkonstruktion • hydraulische Eindrückvorrichtung für das Schreddergut • wasserundurchlässiger Deckel mit Absaugvorrichtung • Vorrichtung für Flüssigkeitszufuhr (mind. 2 Öffnungen)
Revisionstür	<ul style="list-style-type: none"> • Wasserundurchlässige Stahlblechkonstruktion • Größe mind. 400x500 mm • elektrisch gesichert
Antriebsmotor	<ul style="list-style-type: none"> • Leistung: 15 – 22 kW
Maschinengestell	<ul style="list-style-type: none"> • geschlossene, abgedichtete Stahlkonstruktion • im unteren Bereich einseitig zu öffnen, um Behälter unterzustellen

Der Schredder wurde im Dezember 2021 geliefert und in Betrieb genommen, sodass der Meilenstein 1 des Projektes wie geplant erreicht wurde (vgl. Abbildung 3).



Abbildung 3: Einwellen-Zerkleinerungsmaschine Typ M700/1-600-15,0 kW vom Hersteller Erdwich

Die FTIR-Messung des iPAT zeigten hohe Konzentrationen der leicht-siedenden Bestandteile des Elektrolyten. Ethylencarbonat (EC) als Schwersieder, mit einem Flammpunkt von 143 °C, war aufgrund der niedrigen Temperaturen in der FTIR-Messung nicht nachzuweisen. Die Konzentrationen von EMC und DMC in der Abluft stiegen über den zeitlichen Verlauf der Zerkleinerung an, konnten jedoch über die vermehrte Zufuhr von Prozesswasser reduziert werden (vgl. Abbildung 4). Da die Konzentrationen der Gase HCl, HF und CO unterhalb der Bestimmungsgrenzen lagen, konnten diese für die weitere Betrachtung ausgeschlossen werden. Um die organischen Carbonate (EMC und DMC) aus der Abluft herauszufiltern, wurde eine Abluftreinigung mittels Aktivkohlefilter beschafft und installiert.

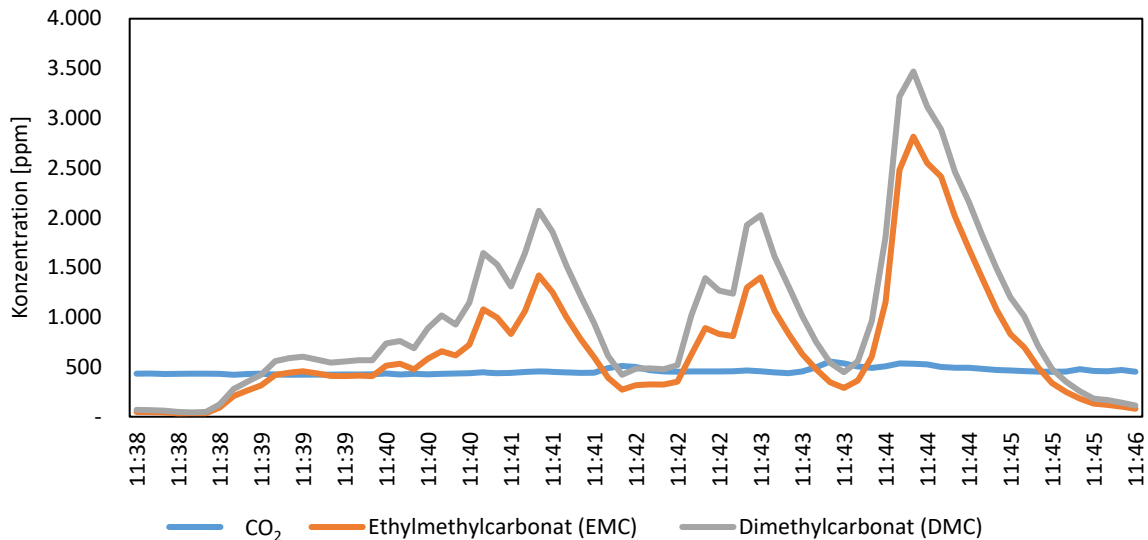


Abbildung 4: Ergebnisse der FTIR-Messung der Abluft bei der Zerkleinerung eines 13 kg NMC811 EV-LIB Moduls

- **Unterarbeitspaket 1.3**

Die Zerkleinerungsversuche wurden mit NMC811-Modulen der Marke BMW/mini (vgl. Abbildung 5) durchgeführt. Anschließend wurde das Schreddergut hinsichtlich der weiteren Aufbereitungsschritte bewertet (Unterarbeitspaket 1.2). In Abhängigkeit der Sieblochweite des Austragssiebs konnten die Anteile an Materialverbunden im Output verringert werden. Erwartungsgemäß waren diese bei größeren Austragssieben teilweise deutlich höher (30 mm: ca. 30 Massen-%), als bei geringeren Siebgrößen (15 mm: ca. 8 Massen-%, 20 mm: ca. 18 Massen-%). Gleichzeitig waren aber die Anteile der Feinkornfraktion (< 2 mm) bei geringeren Austragssiebgrößen (15 mm: ca. 51 Massen-%) höher als bei größeren Austragssieben (30 mm: ca. 40 Massen-%). Für eine möglichst hohe Rückgewinnung von Schwarzmasse und flächigen Folienpartikeln wurde für die weiteren Zerkleinerungs- und Aufbereitungsversuche eine Sieblochgröße von 20 mm gewählt.

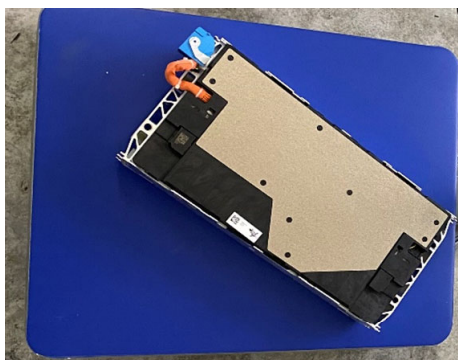


Abbildung 5: NMC811-Modul der Marke BMW/mini

Die Vorversuche haben zudem gezeigt, dass das Probenmaterial aus zerkleinerten Batterien in Wasser auch nach einigen Tagen noch reaktiv war. In dieser Zeit stieg der pH-Wert von 9 - 11 direkt nach der Zerkleinerung auf 13 - 14 an; wodurch die zerkleinerten Aluminiumfolien teilweise in Lösung gingen. Um dieses zukünftig zu verhindern, sind die zerkleinerten LIB innerhalb weniger Stunden nach der Zerkleinerung zu sieben und weiter aufzubereiten, sodass die organischen Bestandteile des Elektrolyten entfernt werden. Nur so ist eine quantitative Rückgewinnung der Aluminiumfolien über eine mechanische Aufbereitung möglich.

Die Module (je ca. 13 kg) wurden einzeln im Schredder unter Verwendung eines Austragssiebs mit der Sieblochgröße 20 mm zerkleinert. Der Schredder-Output wurde anschließend in einem zweistufigen Siebprozess (2 mm und 0,164 mm) in das Prozesswasser, die groben sowie feinen Feststoffe getrennt. Die Fraktion 0,164 – 2 mm wurde anschließend als Zwischenprodukt in den Prozess der Hydrometallurgie eingebracht. Das Prozesswasser wurde anschließend mit geringen Mengen an Frischwasser (je ca. 5 L) aufgefüllt und als Flüssigkeitsinput im nächsten Zerkleinerungszyklus verwendet. Tabelle 4 zeigt hierfür die gemessenen Versuchsparameter.

Tabelle 4: Auswertung von LIB-Schredderversuchen mit Kreislaufführung des Prozesswassers

Probe	Input in den Schredder	Prozesswasserzugabe	Feststoff-Output (< 2 mm)	T, vor der Zerkleinerung	T, nach der Zerkleinerung	pH-Wert, nach 30 min
[Einheit]	[kg]	[L]	[kg]	[°C]	[°C]	[-]
EV-Modul 1	13,1	29,0	18,3	21,5	25	9
EV-Modul 2	13,0	33,6	19,8	/	26,5	9
EV-Modul 3	13,0	38,1	19,5	/	29	10

Das Prozesswasser wurde im Kreislauf geführt, um den Frischwassereinsatz zu minimieren und die nachgeschaltete Lithium-Extraktion zu optimieren. Hierbei wurde der Ressourceneinsatz aus den Vorversuchen von durchschnittlich 4,25 kg Frischwasser pro 1 kg Batterie-Inputmasse auf 1,25 kg Wasser pro 1 kg Batterie-Inputmasse reduziert (vgl. 1. Zwischenbericht UAP 1.2.). Es lässt sich dabei ein Temperaturanstieg von ca. 21,5 °C auf 29 °C sowie ein erhöhter pH-Wert von 9-10 beobachten (vgl. Tabelle 2). Für eine kontinuierliche Prozessführung im industriellen Maßstab sind dies kritische pH-Werte für einen stabilen Prozess. Dieser darf in dem Prozess nicht zu stark steigen, um u. a. eine Auflösung der Aluminiumfolien zu verhindern. Die Spalte „Feststoff-Output“ stellt den Anteil der groben Feststoffe im nassen Zustand dar. Vorab wurde der Schredder-Output mit einem Sieb (2 mm) von dem Großteil des

Prozesswassers und der Schwarzmasse separiert. Der Anstieg des pH-Wertes in den alkalischen Bereich ist vermutlich auf den Anstieg der Lithium-Konzentration im Prozesswasser zurückzuführen, da sowohl Lithiumfluorid, Lithiumcarbonat als auch Lithiumhydroxid alkalisch wirken. Dies lässt auf eine Anreicherung des Lithiums schließen, welche genutzt werden soll, um dieses in nachfolgenden Prozessschritten zurückzugewinnen. In den Prozesswässern wurden für den Nachweis die Lithium- und Carbonat-Gehalte mittels ICP-OES bestimmt (vgl. Abbildung 6). Die Carbonat-Gehalte geben Auskunft über die im Prozesswasser gelösten Bestandteile des Elektrolyten, welche über chemische Verfahren zurückgewonnen werden können (vgl. AP 4).

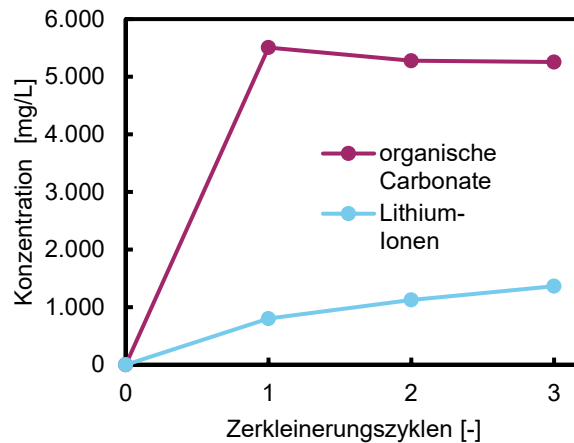


Abbildung 6: Verlauf der Lithium- und Carbonat-Konzentration im Prozesswasser bei Batteriezerkleinerung mit Prozesswasser-Kreislaufführung

Bei Zerkleinerung unter Zugabe von entsalztem Wasser (Feststoff-Flüssigkeitsverhältnis 1:1,25) wurde im Prozesswasser ein Lithiumgehalt von 802 mg/L gemessen. Mit der Kreislaufführung des Prozesswassers erhöhte sich die Lithiumkonzentration auf 1.126 mg/L (2. Zerkleinerungszyklus; 1. Kreislaufführung) bzw. um 40 %. Mit der 2. Kreislaufführung wurde eine Lithiumkonzentration von 1.364 mg/L erreicht. Das Lithium kann im Prozesswasser z. B. als Lithiumfluorid (Löslichkeit in Wasser: ca. 1,3 g/L), als Lithiumcarbonat (Löslichkeit in Wasser: ca. 13 g/L) oder als Lithiumhydroxid (113 g/L) gelöst sein. Die maximale Menge an Lithium im Prozesswasser würde also bei ca. 32,74 g/L liegen (wenn 100 % in Form von Lithiumhydroxid vorliegt). Dementsprechend wurde noch keine Sättigung von Lithium im Prozesswasser erreicht, hierfür war eine weitere Kreislaufführung notwendig. Diese wurde erneut im Scale Up (vgl. UAP 6.2) durchgeführt.

- **Unterarbeitspaket 1.3**

Die anschließenden Prozesse zur Abtrennung der Schwarzmasse (Unterarbeitspaket 1.3) wurden mit unterschiedlichen Feststoff-Flüssigkeits-Verhältnissen (vgl. Tabelle 4) untersucht. Jedes Fest-Flüssig-Verhältnis wurde in dreifacher Ausführung durchgeführt, um Schwankungen in der Zusammensetzung der einzelnen Proben mit einer möglichst repräsentativen Probenahme zu minimieren. Mit Hilfe der optimierten nassmechanischen Aufbereitungsschritte wurde die Qualität der groben Feststoffe, die u. a. aus Aluminium-, Kupfer- und Kunststofffolien sowie Gehäuseteilen bestehen, deutlich verbessert. Der Anteil an feinen Feststoffen in der Grobfraktion konnte von 10 Massen-% aus den Vorversuchen, auf 4 Massen-% reduziert werden. In Tabelle 5 ist die Rückgewinnung der Schwarzmasse aus dem Schredder-Output nach jedem Aufbereitungsschritt der Versuchskaskade aus Abbildung 5 dargestellt. Insgesamt

konnten durch die Aufbereitungskaskade ca. 78 bis 82 Massen-% der gesamten Schwarzmasse zurückgewonnen werden. Die Verluste von 18 bis 22 Massen-% lassen sich auf die Rückstände der feinen Feststoffe, sowie die Materialverbunde in der Grobfraktion zurückführen. Zu beobachten war außerdem, dass vor allem durch den Waschprozess und die Nasssiebung ein Großteil der Schwarzmasse zurückgewonnen werden konnte.

Tabelle 5: Rückgewinnung der Schwarzmasse durch die einzelnen Aufbereitungsschritte

Feststoff-Flüssigkeits-Verhältnis	Waschprozess [%]	Schwimm-Sink-Trennung [%]	Nass-Siebung [%]	Trockensiebung (<1mm) [%]	Nassmechanisch gesamt [%]
1:3	33,8	7,3	41,2	17,8	82,2 (82,3)
1:5	31,6	12,3	34,1	22,0	78,0
1:10	29,9	9,9	41,4	18,9	81,2

Aus den durchgeführten Zerkleinerungsversuchen resultiert das in Abbildung 7 dargestellte Aufbereitungs- und Versuchskonzept, welches auch für die weiteren Versuche übernommen wurde.

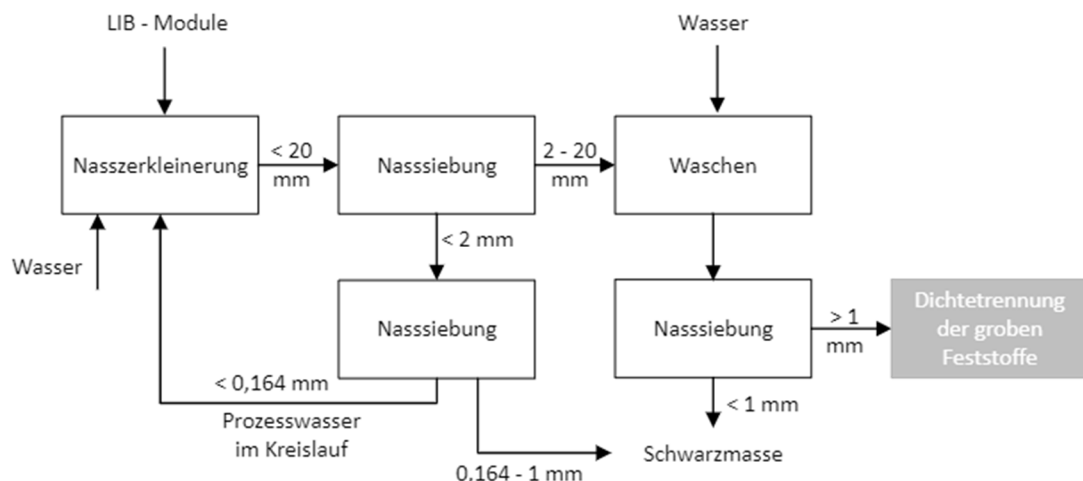


Abbildung 7: Versuchsaufbau für die Nasszerkleinerung von LIB-Modulen mit Kreislaufführung des Prozesswassers

- **Unterarbeitspaket 1.4**

Hinsichtlich einer iterativen Optimierung der Zerkleinerung von LIB wurden die Auswirkungen des Zell- und Modulgehäuses auf das Zerkleinerungsergebnis sowie eine zweistufige Zerkleinerung untersucht.

Auswirkungen des Zell- bzw. Modulgehäuses auf die Zerkleinerung

Bei der Zerkleinerung von EV-Modulen mit Pouchzellen und Kunststoffgehäuse war zu beobachten, dass vor allem der Anteil der Materialverbunde im Schredder-Output mit ca. 4 Massen-% deutlich kleiner war als bei EV-Modulen mit prismatischen Zellen und Aluminium- bzw. Stahlmodulgehäuse (ca. 8 Massen-% bis 22 Massen-%) (vgl. Tabelle 3). Da die Auswirkungen von Zell- und Modulgehäuse auf die mechanische Aufbereitung von LIB von *Wilke et al. (2023)* sowie im Rahmen der greenBat-Projekte „DIGISORT“ und „LOWVOLMON“ untersucht wurden, wird hier nicht detailliert darauf eingegangen.

Zweistufige Zerkleinerung:

Die in UAP 1.1 und UAP 1.2 dargestellten Zerkleinerungsversuche führten bei kleineren Austragssiebgrößen (15 mm bzw. 20 mm) mit 8 Massen-% und 22 Massen-% zu einem geringeren Anteil an Verbunden im Schredder-Output (vgl. UAP 2.1). Da Verbundanteile aber eine weitere mechanische Separation erschweren, wurde in weiteren Versuchen der Effekt einer Nachzerkleinerung überprüft. Hierzu wurde eine zweistufige Zerkleinerung mit Siebgrößen von 40 mm und 20 mm getestet. Tabelle 3 zeigt die stoffliche Zusammensetzung der Output-Fractionen. Nach der ersten Zerkleinerungsstufe war ein hoher Anteil an Materialverbunden (ca. 60 Massen-%) zu erkennen, welcher nach der zweiten Zerkleinerungsstufe auf ca. 37 Massen-% reduziert werden konnte. Im Vergleich zu den Vorversuchen zur einstufigen Zerkleinerung auf 20 mm (vgl. Tabelle 3) war bei der zweistufigen Zerkleinerung auf 20 mm jedoch ein Anstieg des Verbundanteils um ca. 52 % zu beobachten. Mit der zweistufigen Zerkleinerung sank darüber hinaus der Feinanteil (< 2 mm) im Schredder-Output von ca. 28 Massen-% auf ca. 18 Massen-%. Dies lässt sich u. a. durch den höheren Massenanteil an Materialverbunden erklären, in die auch ein Teil der Aktivmasse eingeschlossen war. Dieser Anteil ist somit auch nicht über einen Siebschritt als Feinfraktion abzutrennen, was zu einer geringeren Schwarzmasserückgewinnung und somit zu einer geringeren Rückgewinnungsquote der in der Batterieverordnung geregelten Elemente (u. a. Lithium und Kobalt) führt.

- **Unterarbeitspaket 2.1**

Im Unterarbeitspaket 2.1 wurde die Zusammensetzung der LIB bei unterschiedlichen Austragssieben untersucht. Dabei wurde die Korngrößenverteilung (vgl. Abbildung 8) sowie die Massenzusammensetzung der Sortierfraktionen (vgl. Tabelle 6) analysiert. Wie zu erwarten, war der Anteil der Feinfraktion bei kleinen Austragssiebgrößen (z. B. 15 mm und 20 mm) größer als bei großen Austragssiebgrößen (30 mm bzw. 40 mm). Dies lässt auf einen besseren Materialaufschluss schließen. Dies wird auch durch die Verbundanteile (vgl. Tabelle 6) deutlich. Hier zeigten kleine Austragssiebe mit 4 Massen-% bzw. 8 Massen-% einen deutlich besseren Materialaufschluss als große Austragssiebe mit bis zu 30 Massen-%.

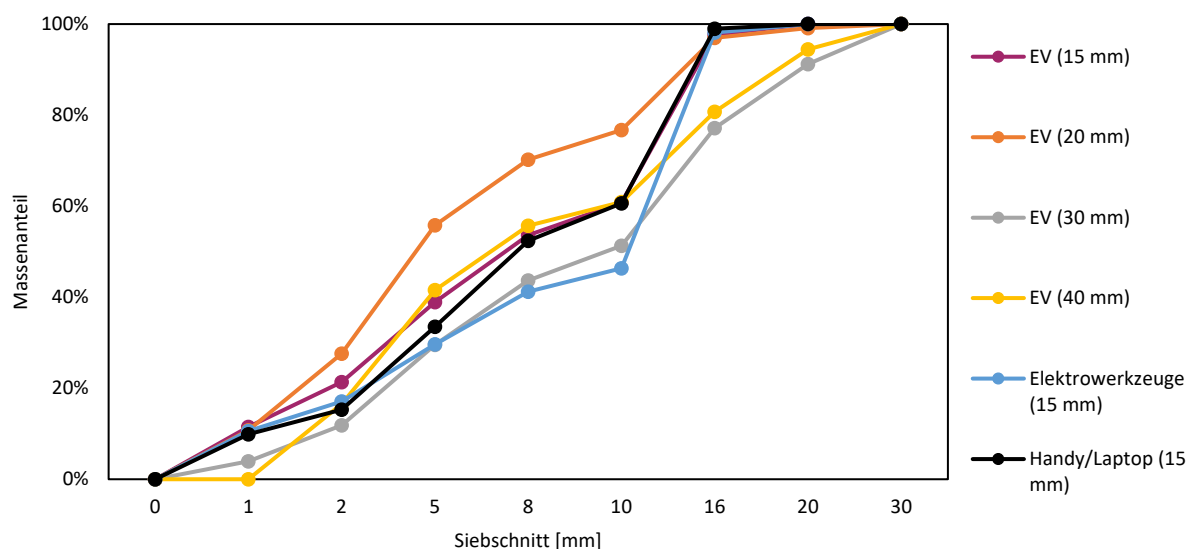


Abbildung 8: Sieblinien zerkleinerter Lithium-Ionen-Batterien verschiedener Anwendungen bei unterschiedlichen Austragssieben

Die Zusammensetzung der LIB wurde nach der Zerkleinerung mittels manueller Sortierung durchgeführt (vgl. Abschnitt II). Die Module setzen sich dabei aus Modul- und Zellgehäuse, Elektrodenfolien, Separatorfolie und der Feinfraktion zusammen. Die Separator-Folien bestehen überwiegend aus Polyethylen (PE) oder Polypropylen (PP); die Elektrodenfolien aus Kupfer (Anode) bzw. Aluminium (Kathode). Gehäuse- und Modulperipherieteile (wie z. B. Kabel) bestehen aus massivem Aluminium, Stahlblech oder auch technischen Hartkunststoffen wie z. B. Polyamid (hier vor allem PA 6). Der Unterschied des EV-Moduls (Pouch) zu den anderen EV-Modulen (Prismatisch) war das Gehäusematerial (vgl. Tabelle 6). Während alle Module mit prismatischen Zellen ein Gehäuse aus Aluminium (und teilweise aus Eisen/Stahl) hatten, hatte das EV-Modul mit Pouch-Zellen ein Gehäuse aus Hartkunststoff (PA 6). Eine Besonderheit lag außerdem in den Massenanteilen der Aluminiumfolie. Hierbei wurden in 3 Versuchen lediglich 0 bzw. 1 Massen-% Aluminiumfolie identifiziert. Eine Erklärung hierfür ist der Verlust von Aluminiumfolie in Materialverbunde. Das Referenzmodul zeigt hier Anteile von in Summe 24 Massen-% an Elektrodenfolie, wobei durchschnittlich lediglich 8,2 Massen-% in den Zerkleinerungsversuchen zurückgewonnen werden konnte. Auch hier ist ein Verlust in die Fraktion der Materialverbunde wahrscheinlich. Weiter ist auch zu sehen, dass der Anteil der Feinfraktion eines Referenzmoduls⁹ mit 44 Massen-% höher ist, als bei 4 der 5 dargestellten Proben. Das lässt darauf schließen, dass zwischen 1 Massen-% bis zu 18 Massen-% der Schwarzmasse weiterhin an den groben Feststoffen (z. B. in den Materialverbunden) haften bleibt.

Tabelle 6: *Sortierfraktionen zerkleinerter Lithium-Ionen-Batterien*

Probe	R	1	2	3	4	5
Typ	EV	EV	EV	EV	EV (Kreislauf)	EV
Zellformat	Prismatisch	Prismatisch	Prismatisch	Prismatisch	Prismatisch	Pouch
Siebgröße	Diekmann et al. 2017	15 mm	20 mm	30 mm	20 mm	20 mm
Kupferfolie	14%	7%	6%	6%	2%	6%
Aluminiumfolie	10%	6%	0%	1%	1%	6%
Aluminiumgehäuse	18%	11%	35%	18%	21%	0%
Separatorfolie	7%	9%	8%	10%	4%	8%
Verbunde	0%	8%	18%	22%	30%	4%
Hartkunststoffe	3%	4%	6%	2%	5%	28%
Eisen/Stahl	4%	2%	0%	0%	0%	0%
Sonstiges	0%	3%	1%	1%	1%	5%
Feinfraktion	44%	51%	26%	40%	37%	43%
	100%	100%	100%	100%	100%	100%

⁹ **Diekmann et al. 2017:** Abschlussbericht zum Verbundvorhaben Recycling von Lithium-Ionen-Batterien - LithoRec II, TU Braunschweig, 2017

- **Unterarbeitspaket 2.2**

In Unterarbeitspaket 2.2 wurden verschiedene, nass- und trockenmechanische, Trennverfahren untersucht, um die groben Feststoffe weiter nach ihren Inhaltsstoffen zu sortieren.

Dichtentrennung: Schwimm-Sink-Trennung von Metall- und Kunststoffpartikeln

Ziel der Schwimm-Sink-Trennung war vorrangig die Separation der Kunststofffraktionen von den Metallfraktionen. Um eine optimale Trennung zu erreichen, wurden verschiedene Verweilzeiten untersucht (vgl. Abbildung 9). Zu beobachten war, dass die Schwerfraktion jeweils zwischen 88 Massen-% und 93 Massen-% der gesamten Probe darstellt. Die Schwerfraktion setzte sich dabei hauptsächlich aus den Sortierfraktionen der Gehäuseteile (hier: Aluminium), der Materialverbunde sowie der Elektrodenfolien zusammen. In der Leichtfraktion waren neben Materialverbunden, die Fraktionen der Hartkunststoffe und Kunststofffolien zu finden.

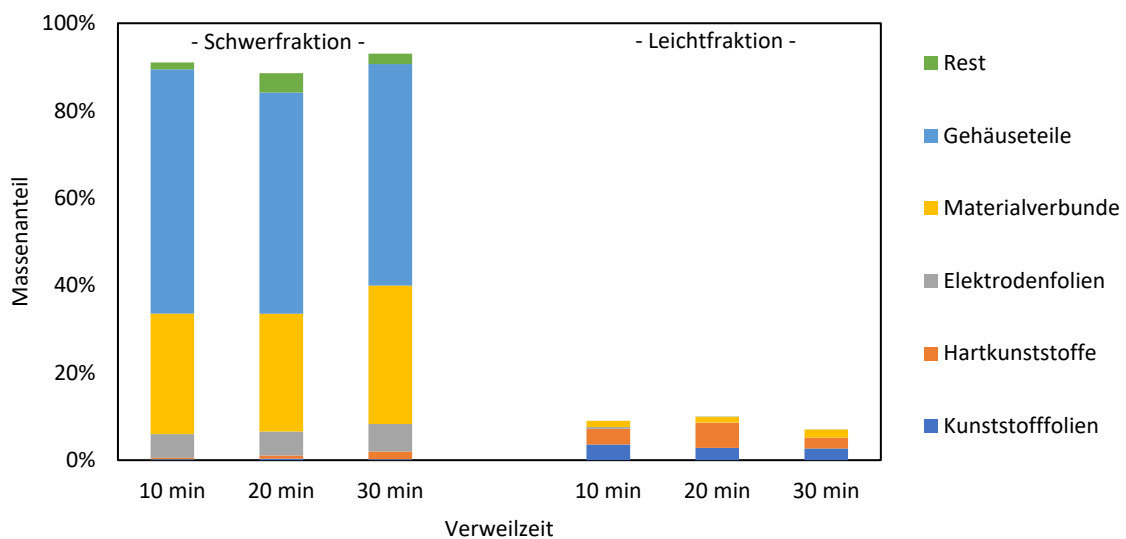


Abbildung 9: Ergebnisse Schwimm-Sink-Trennung (Massenanteile der Leicht- und Schwerfraktion, Trockengewicht)

Dahingehend ließ sich vor allem bei den Verweilzeiten von 10 min. bzw. 20 min. eine gute Separation dieser Fraktionen beobachten (vgl. Abbildung 10). Während nach 10 min. noch ca. 7 Massen-% der Elektrodenfolien in der Leichtfraktionen zu finden, waren nach 20 min. nicht mal mehr 1 Massen-% aufzufinden. Die Fraktionen Hartkunststoffe (91 Massen-% bzw. 89 Massen-%), sowie Kunststofffolien (95 Massen-% bzw. 90 Massen-%) waren nach 10 min. bzw. 20 min. überwiegend in der Leichtfraktion zu finden. Nach 30 min. Verweilzeit hat sich die Separation der Hartkunststoffe deutlich verschlechtert. Zu Beginn sind die Hartkunststoffe trotz ihrer höheren Dichte als Wasser in der Leichtfraktion zu finden, was mit der Unterstützung durch die Lufterströmung zu begründen ist. Mit fortschreitender Verweilzeit reduziert sich diese Wirkung wieder und die Hartkunststoffe sind vermehrt auch in der Schwerfraktion zu finden.

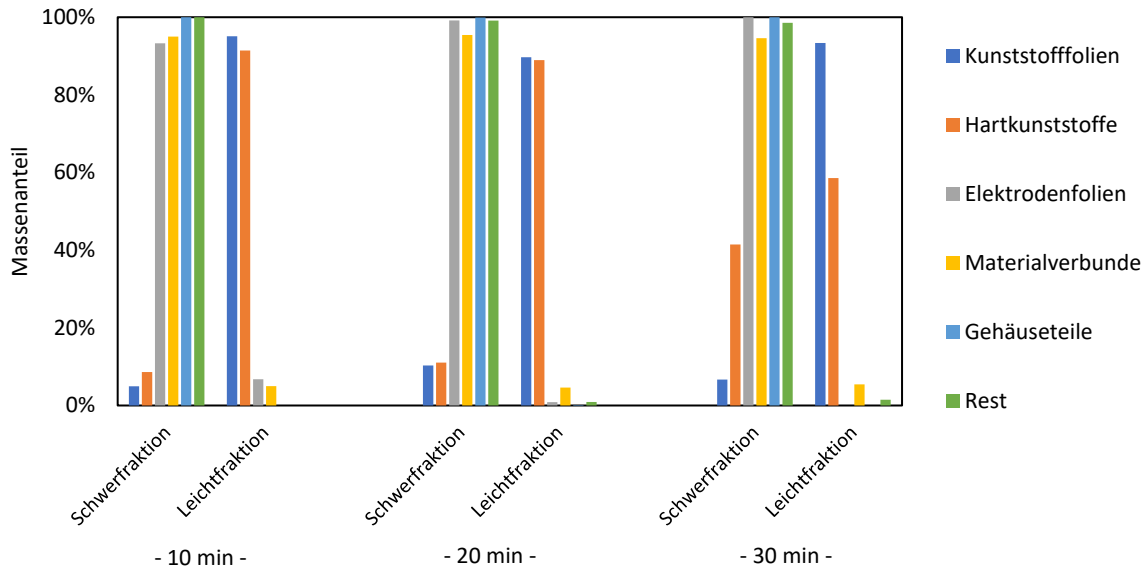


Abbildung 10: Anteil der Sortierfraktionen in Leicht- bzw. Schwerfraktion in Abhängigkeit der Verweilzeit

Die Elektrodenfolien, Gehäuseteile sowie Materialverbunde waren nach 20 min. alle zu mindestens 95 Massen-% in der Schwerfraktion zu finden. Dadurch lässt sich schließen, dass bei der Dichtentrennung mittels Schwimm-Sink-Trennung, bei einer Verweilzeit von 20 min., gute Ergebnisse erzielt werden können und diese so umgesetzt werden sollte. Eine weitere Separation der Elektrodenfolien von den Gehäuseteilen, bzw. der Aluminiumfolien von den Kupferfolien ist mit dem Trennmedium Wasser nicht möglich. Hierfür müsste die Dichte des Trennmediums auf einen Wert zwischen der Dichte von Aluminium ($2,7 \text{ g/cm}^3$) und Kupfer ($8,96 \text{ g/cm}^3$), durch ein Zuschlagsstoff, erhöht werden. In der Industrie wird dazu u. a. Ferrosilizium eingesetzt. Für einen Gesamtprozess würde also eine zweistufige Dichtentrennung mit unterschiedlichen Trennmedien einzuplanen sein.

Dichtentrennung: Zick-Zack-Windsichter von Metall- und Kunststoffpartikeln

Für einen Vergleich wurde, neben der Schwimm-Sink-Trennung, außerdem eine trocken-mechanische Dichtentrennung mit einem Zick-Zack-Windsichter durchgeführt. Dabei wurden die unterschiedlichen Massenverhältnisse von Leicht- und Schwerfraktion, je nach eingestellter Luftgeschwindigkeit, untersucht (vgl. Abbildung 11).

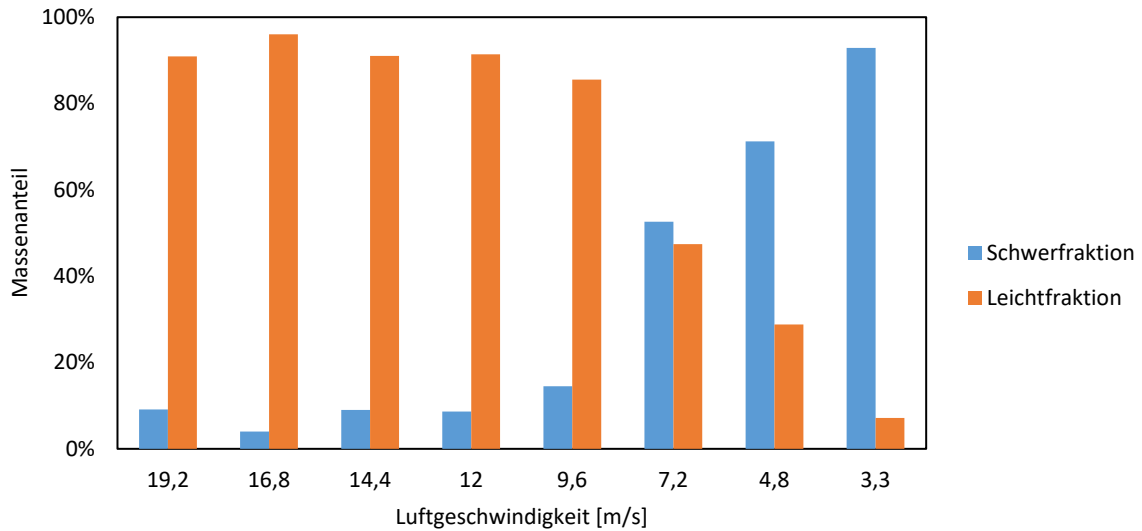


Abbildung 11: Vergleich der Sortierfraktionen bei unterschiedlichen Luftgeschwindigkeiten im Labor Zick-Zack-Windsichter

Dabei war zu beobachten, dass bei hohen Luftgeschwindigkeiten von ≥ 12 m/s der Anteil der Schwerfraktion konstant bei bis zu 9 Massen-% lag. Die Schwerfraktion bestand hier ausschließlich aus massiven Modulgehäuseteilen (vgl. Abbildung 12). Aufgrund der großen Gewichtsunterschiede der einzelnen Partikel war das ein erwartbares Ergebnis.

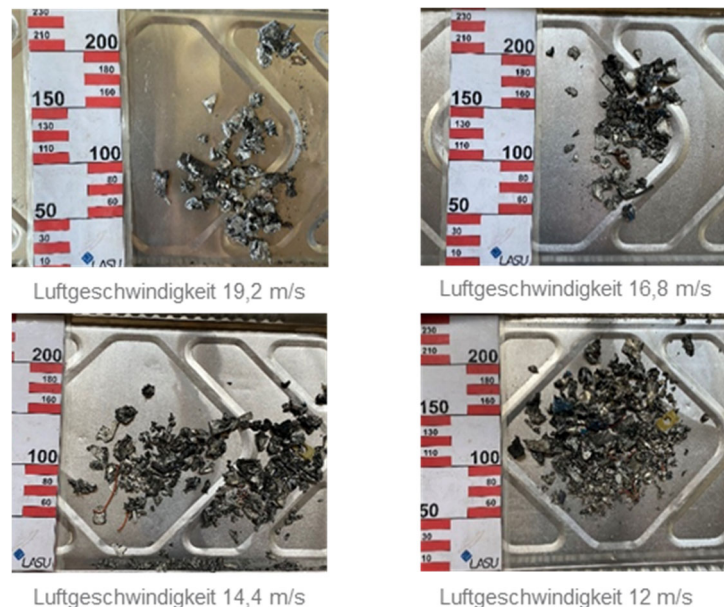


Abbildung 12: Schwerfraktion aus den Windsichter-Versuchen bei 12 bis 19,2 m/s Luftgeschwindigkeit

Eine Separation von Kunststoff- und Metallfraktionen, ähnlich wie bei der Schwimm-Sink-Trennung, war mit dem Zick-Zack-Windsichter nicht möglich. Hier wurden bei niedrigen Luftgeschwindigkeiten noch alle Hartkunststoffe in das Schwergut ausgetragen, die Kunststofffolien waren in beiden Trennfraktionen zu finden (vgl. Abbildung 13).

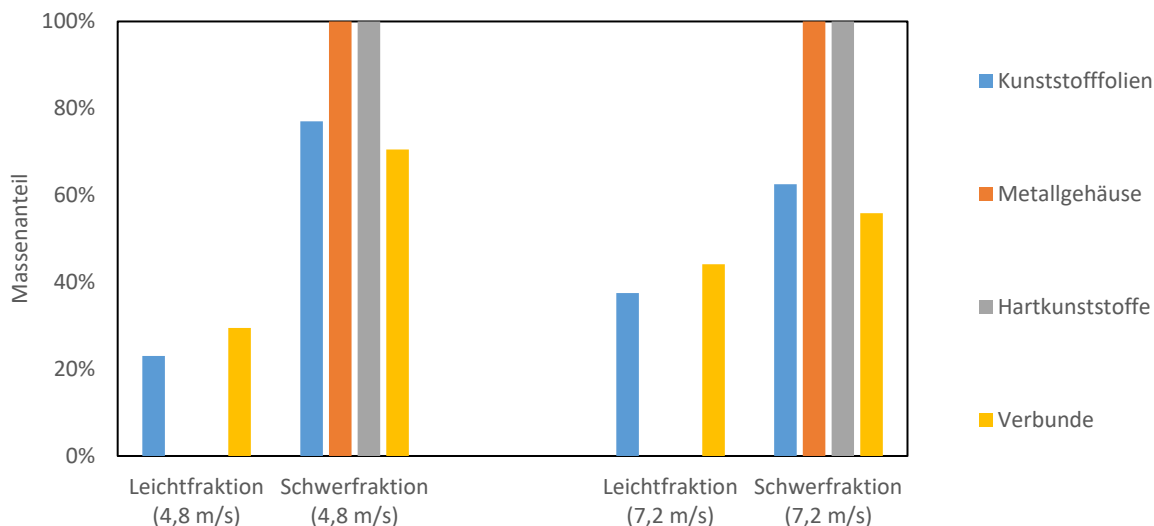


Abbildung 13: Zusammensetzungen von Leicht- und Schwerfraktion bei Windsichterversuchen mit 4,8 m/s bzw. 7,2 m/s Luftgeschwindigkeit

Ein Ansatz zur besseren Ausnutzung der Dichteunterschiede ist die Reduzierung der Kornbandbreite durch vorherige Siebung sowie eine Verkuglung mittels Prallmühle. Entsprechende Untersuchungen wurden in den Clusterprojekten „DemoSens“ (FKZ 03XP0314A) sowie „DIGISORT“ (FKZ 03XP0337) durchgeführt, weshalb diese hier nicht weiter vertieft wurden. Da, im Rahmen eines vorgelagerten, nass-mechanischen Aufbereitungsprozess, eine vorherige Trocknung der Materialfraktionen notwendig wäre und eine Separation ohne Verkuglung nicht zu funktionieren scheint, ist die Dichtesortierung mittels Zick-Zack-Windsichter für ein entsprechendes Aufbereitungskonzept (vgl. AP 6) hier nicht zielführend.

- **Unterarbeitspaket 2.3**

Für die Bewertung der aufbereiteten Teilfraktionen im Hinblick auf ein hochwertiges Recycling (UAP 2.3) sind vor allem deren weitere Verwendung in mechanischen, chemischen und metallurgischen Prozessen sowie die Vermarktbarkeit der Einzelfraktionen als Sekundärrohstoffe relevant. **Lithium** lässt sich über die Kreislaufführung des Prozesswassers anreichern und aus diesem wieder mittels Membrantechnologie oder Fällungsreaktionen zurückgewinnen (siehe auch TV-A). Alternativ ist auch denkbar, das Prozesswasser kontinuierlich im Kreislauf zu fahren, damit das Lithium, z. B. als Lithiumcarbonat, ausfällt und über die hydrometallurgische Prozesskette zurückgewonnen werden kann.

Die **Schwarzmasse** lässt sich zu ca. 80 % über mechanische Prozesse (Nass-Siebung, Waschung, vgl. UAP 1.3) zurückgewinnen. Die Materialverluste lassen sich mit dem nicht-wasserlöslichen Binder des Kathodenaktivmaterials (PVDF) erklären. Im Vergleich zum Kathodenaktivmaterial (hier: NMC811, LFP) lässt sich das Anodenaktivmaterial (Grafit) von den als Anode verwendeten Kupferfolien einfacher lösen. Der hierfür verwendete Binder ist wasserlöslich ist. Dadurch ist davon auszugehen, dass ein Großteil der Schwarzmassenverluste in die Grobfraktion aus dem werthaltigen Kathodenaktivmaterial besteht. Entsprechende Analysen werden im Schlussbericht des TV-A der RWTH Aachen dargestellt.

In Bezug auf die **Elektrodenfolien** lässt sich festhalten, dass die Aluminiumfolien sich vor allem in der Fraktion < 5 mm anreichern, während Kupferfolien zum Großteil in der Fraktion 5

– 10 mm zu finden sind (siehe auch 1. Zwischenbericht). Dieses resultiert aus den physikalischen Eigenschaften der Metalle, da Kupfer ein härteres Metall ist als Aluminium. Kupferfolien unterliegen somit bei einer mechanischen Abtrennung der Aktivmasse geringeren Zerkleinerungseffekten, als die Aluminiumfolien. Für ein werkstoffliches Recycling der Elektrodenfolien müssen diese jedoch noch voneinander getrennt werden. Etwaige Aufbereitungsversuche wurden dafür im BMBF-Projekt „DemoSens“ (FKZ 03XP0314A) durchgeführt. Das **Aluminiumgehäuse** lässt sich grundsätzlich mittels Dichtentrennverfahren gut von der Folien- und Verbundfraktion separieren. Vor allem mittels Zick-Zack-Sichter konnten die Gehäuseteile fast vollständig zurückgewonnen werden wodurch ein hochwertiges Recycling dieser Fraktion möglich wird.

Die als Separator eingesetzten **Kunststofffolien** lassen sich über eine Schwimm-Sink-Trennung mit einer stofflichen Reinheit von über 90 Massen-% abtrennen. Die Ausbringungsraten für diese Folien liegen bei maximal 60 Massen-%. Durch die Rückstände der Aktivmaterialien (Nickel, Kobalt, Mangan, Graphit) ist jedoch aktuell kein werkstoffliches Recycling der Kunststofffolien möglich.

- **Unterarbeitspaket 6.2**

Implementierung eines Scale-Ups in allen Prozessschritten

Durch die unterschiedlichen Dimensionen des Zerkleinerungsaggregates (vgl. AP 1) und die der Geräte und Maschinen der Projektpartner wurde in dem durchgeführten Scale-Up (Unterarbeitspaket 6.2) vor allem der Fokus auf die Simulation eines kontinuierlichen Prozesses gelegt. Hierfür wurden 6 PKW-Module (BMW-Mini, NMC811, je ca. 13 kg), sowie 6 Stapler-Module (Toyota, LFP, je ca. 4,3 kg) in zwei Versuchsreihen aufgeschlossen. Bei der Versuchsreihe der EV-Module wurde das Prozesswasser im Kreislauf geführt, um den gewünschten Anlagenbetrieb zu simulieren. Als Ergebnis der Versuche aus AP 1, AP 2 sowie AP 6 wurde eine Massenbilanz (normiert auf 1 kg Batterieinput EV-Module) erstellt (vgl. Abbildung 14).

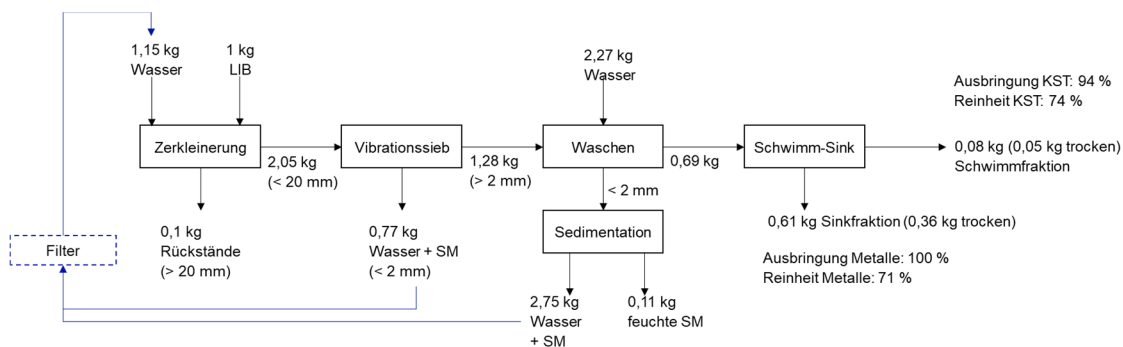


Abbildung 14: Normierte Massenbilanz Aufbereitungsversuche von EV-Module (NMC811, prismatische Zellen) im Scale Up

Als Zwischenprodukte wurden

- Prozesswasser,
- Mittelkornfraktion (0,5 – 2 mm),
- Stromleiterfolien (Aluminium, Kupfer),
- Schwarzmasse (< 0,5 mm),

und als Endprodukte

- Elektrolytbestandteile (vor allem organische Carbonate), aus der Abluftreinigung,
- Separatorfolie (PE, PP),
- Aluminium (massiv),
- Eisenmetalle (massiv),

erzeugt. Das Prozesswasser wurde dabei im Kreislauf verwendet und ab einer Lithiumcarbonat-Sättigung (zu erwarten sind hier die Löslichkeitsgrenze von ca. 13 g/l, siehe auch TV-A) in die Lithiumrückgewinnung gegeben. Wie in UAP 1.4 wurde die Lithium-Konzentration im Prozesswasser nach jedem Zerkleinerungsschritt gemessen (vgl. Abbildung 15). Hierbei ist ein Anstieg der Lithium-Konzentration ähnlich zu UAP 1.4 zu beobachten, wobei dieser durch einen hohen Input von Frischwasser im Versuch 8.4 kurz unterbrochen wird. Dies verdeutlicht erneut die Notwendigkeit eines kontinuierlichen Frischwassermanagements für die nachfolgende Lithiumrückgewinnung.

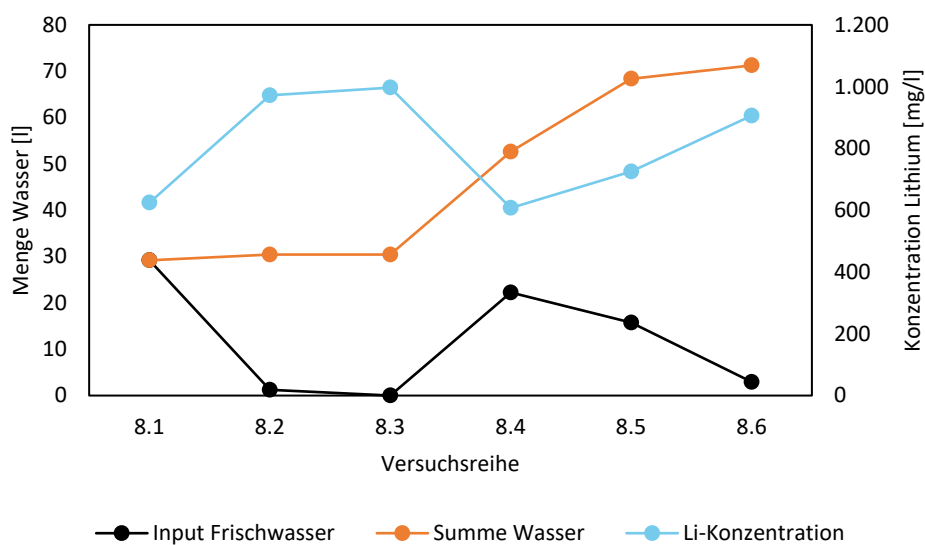


Abbildung 15: Anreicherung von Lithium bei der Kreislaufführung des Prozesswassers in Abhängigkeit des Frischwasserinputs

Die Mittelkornfraktion wurde im Rahmen dieses Projektes nicht weiter betrachtet, da es bereits Ansätze aus dem Clusterprojekt „DemoSens“ gibt, welche angewandt werden können¹⁰. Die Stromleiterfolien gingen auch als Input in den „DemoSens“-Prozess. Die generierte Schwarzmasse diente als Input für das hydrometallurgische Recycling, welches durch das IME der RWTH Aachen untersucht wurde (vgl. TV-A AP 5).

• Unterarbeitspaket 6.3

Auf Basis aller – und insbesondere der Scale-Up – Versuche wurde im Unterarbeitspaket 6.3 ein Gesamtkonzept für die nassmechanische Aufbereitung erarbeitet (vgl. Abbildung 16). Hierbei wird mit einer Aufschlusszerkleinerung bei 20 mm begonnen, um nicht nur die Schwarzmasse, sondern auch die groben Feststoffe weiter aufbereiten zu können. Im Anschluss werden die flüchtigen Elektrolytbestandteile über eine Aktivkohlefilterung extrahiert und können

¹⁰ Zorn, M. et al.: Weitergehende mechanische Aufbereitung von Lithium-Ionen-Batterien. In: Müll und Abfall 12/2023, S. 695-703, <https://muellundabfall.de/ce/weitergehende-mechanische-aufbereitung-von-lithium-ionenbatterien/detail.html>

so als Endprodukt des mechanischen Prozesses, einem potentiellen Recycling zugeführt werden. Für eine optimale Abtrennung der Schwarzmasse von den groben Feststoffen, hat sich eine Kombination von Nass-Siebung und Waschen als vorteilhaft erwiesen (vgl. UAP 1.2). Um die Rückgewinnung noch weiter zu steigern, soll ein zweiter Nass-Siebschritt in das Aufbereitungskonzept integriert werden. Für die Aufbereitung der feinen Feststoffe muss erst eine Fest-Flüssig-Trennung sowie eine anschließende Klassierung (bei 0,5 mm) erfolgen. Dies wurde im Projektvorhaben durch das IME im TV-A durchgeführt.

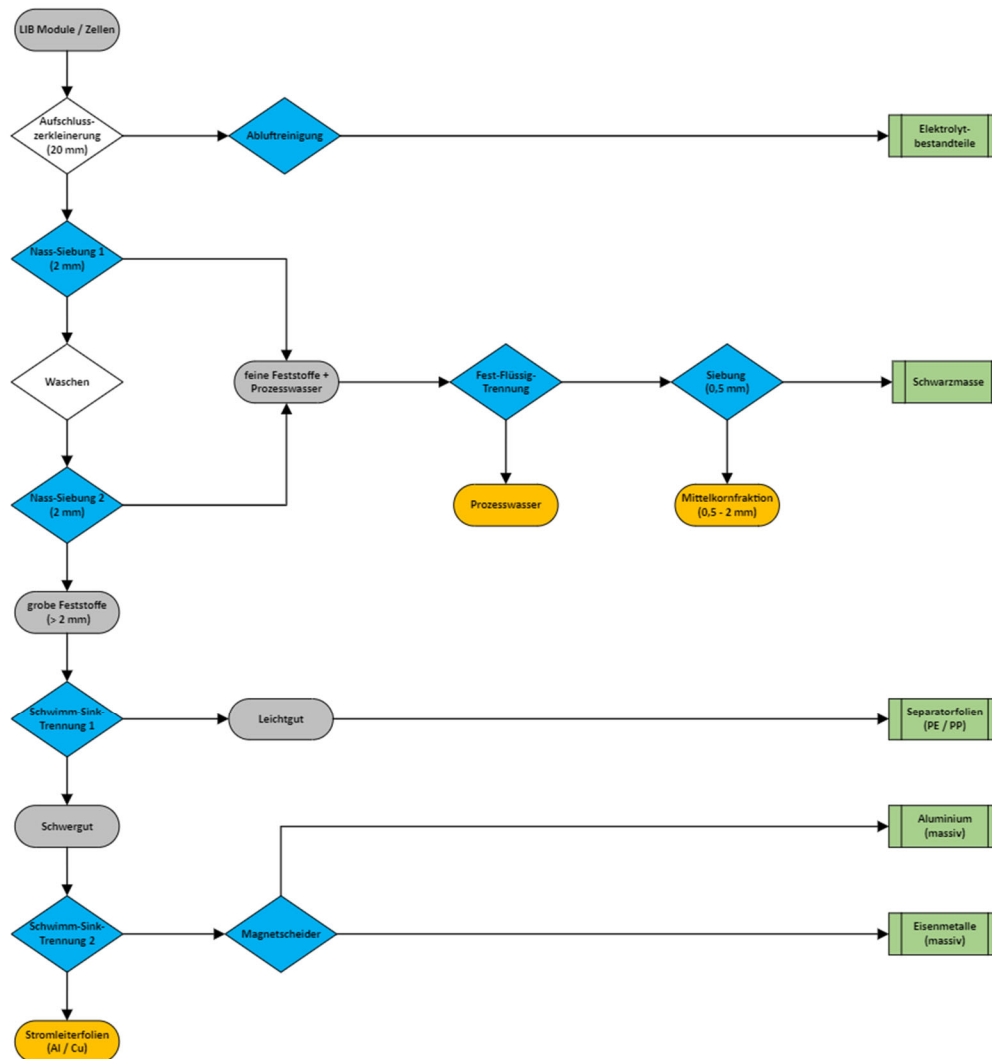


Abbildung 16: Prozessfließbild Nass-Mechanische Aufbereitung von EV-Modulen

Die weitere Aufbereitung der groben Feststoffe erfolgt über eine zweistufige Schwimm-Sink-Trennung, wobei zunächst Wasser als Trennmedium verwendet wird, um die Separatorfolien abzuscheiden. In einem zweiten Trennschritt werden die Metallfolien von den massiven Metallen abgetrennt, welche anschließend mit einem Magnetabscheider in Eisen- und Nichteisenmetalle (vor allem Aluminium) separiert werden.

Wirtschaftlichkeitsbetrachtung der nass-mechanischen Aufbereitung

Neben den zu betrachtenden Grundparametern, wie z. B. Planungszeitraum und Anlagen-durchsatz müssen Beträge für (Re-)Investitionen und jährliche Fixkosten sowie Betriebskosten ermittelt werden. Hierzu wurden, entsprechend des in Abbildung 18 dargestellten Prozess-

fließbildes, Maschinenhersteller zu Investitions- und Betriebskosten befragt. Eine Liste der anzuschaffenden Maschinen inklusive Budgetpreisen sind in Tabelle 7 dargestellt. Für den Barwert der zu tätigen Reinvestitionen wurde mit einem Inflationsfaktor von 1,05 gerechnet.

Tabelle 7: Übersicht Investitionskosten Nassmechanische Aufbereitung „AURRELIA“

Kosten Technik	Anzahl	Investitionskosten (€/Stück (netto))	Montagekosten (% des Invest)	Investitionskosten (€ (netto))	Nutzungsdauer (a)
Schredder (Lindner Antares 1300)	1	95.000	0,15	121.541	6
Vibrationssieb (Fest-Flüssig-Trennung)	6	59.500	0,15	456.737	6
Aktivkohlefilter	1	33.791	0,15	43.231	6
Radialventilator Absaugung, ATEX	1	1.719	0,15	2.199	5
Schwimm-Sink-Tank	2	121.500	0,15	310.888	10
Magnet-Entwässerungssieb	1	12.700	0,15	16.248	6
Magnetscheider (aushebend)	1	43.441	0,15	55.577	6
Stahlkonstruktion	7	10.000	0,15	80.500	6
Arbeitsbühne	1	30.000	0,15	34.500	6
Anlagensteuerung	1	50.000	0,15	57.500	6
Aufgabeband	7	35.000	0,15	281.750	6
Austragsband	7	25.000	0,15	201.250	6
Radlader	2	120.000	0,15	276.000	4
Summe				1.937.921	

Die jährlichen Fixkosten setzen sich aus Kosten für Personal, Abschreibungen, Versicherungen sowie Wartung und Instandhaltung zusammen. Die Abschreibungen wurden linear über die Nutzungsdauer angesetzt. Für die Versicherung der Anlagentechnik wurde eine Pauschale von 1 % der Investsumme angesetzt, für Wartung und Instandhaltung zusammen eine Pauschale von 3 %. Die Personalkosten wurden pauschaliert kalkuliert mit technischem, sowie Leitungspersonal.

Tabelle 8: Übersicht technische Betriebskosten für die Nass-Mechanische Aufbereitung von EV-Modulen

Variable Kosten, Betrieb Technik	Wert	Einheit
Kosten Strom	0,15	€/kWh
Kosten Wasser (inkl. Abwasser)	6,5	€/m ³
Kosten Aktivkohle	3,91	€/kg
Stromverbrauch	80,82	kWh/Mg
Kosten	12,12	€/Mg
Wasserverbrauch	3,70	m ³ /Mg
Kosten	24,05	€/Mg
Aktivkohleverbrauch	23,41	kg/Mg
Kosten	91,55	€/Mg
Bigbags Kosten	5	€/Bag
2 Bags/Mg	10	€/Mg
Summe technische Betriebskosten	137,72	€/Mg

Tabelle 9 zeigt einen Überblick des TCO-Modells anhand des in Abbildung 18 dargestellten Prozesses für eine jährliche Durchsatzleistung von 4.000 Mg LIB. Bei einer, in UAP 1.3 dargestellten, Rückgewinnung von 80 Massen-% der Schwarzmasse, würde eine „Produktion“ von 1 Mg Schwarzmasse in dem dargestellten Prozess ca. 1.182 €¹¹⁾/ an Kosten bedeuten. Zu beachten ist hier jedoch, dass in diesem Teilvorhaben nur einer von drei Teilprozessen des AURRELIA-Gesamtprozesses dargestellt wird. Eine genaue Betrachtung potentieller Erlöse ist nicht möglich, da in diesem Teilvorhaben ausschließlich Zwischenprodukte für weitere Aufbereitungsschritte erzeugt werden. Eine entsprechende Wirtschaftlichkeitsbetrachtung des Gesamtprozesses erfolgt im TV-A unter Verwendung der hier berechneten Gesamtkosten pro Mg LIB.

Tabelle 9: Berechnung der Gesamtkosten pro Mg LIB anhand der TCO-Methode

Bezeichnung	Wert	Einheit
Planungszeitraum	10	a
spezifischer Durchsatz	1.000	kg/h
Arbeitstage	250	d/a
Arbeitsstunden pro Tag (2-Schicht-Betrieb)	16	h/d
Durchsatz	4.000	Mg/a
Investition Technik	1.937.921	€
Inbetriebnahme (10 % von Invest)	193.792	€
Unvorhergesehenes (10% von Invest)	193.792	€
Reinvestition	1.666.382	€
Summe	3.991.888	€
Kosten pro Jahr	628.078	€/a
Investition und Reinvestition pro Mg Module	157	€/Mg LIB*a
Jährliche Kosten		
Fixkosten (Personal, Versicherung, Wartung ...)	484.809	€
Fixkosten (Personal, Versicherung, Wartung ...)	121	€/Mg LIB
Betriebsmittel (Strom, Hilfsstoffe)	138	€/Mg LIB
jährliche Gesamtkosten pro Mg LIB	259	€/Mg LIB
Summe (Investitionen, Fixkosten, Betriebsmittel)	416	€/Mg LIB

2. Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Die geplante Arbeits- und Zeitplanung hat sich innerhalb des Berichtszeitraums nicht geändert.

3. Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse

Die im Rahmen des Projektes erzielten Ergebnisse sind hinsichtlich ihres Nutzens und ihrer Verwertbarkeit entsprechend der Kategorien „wirtschaftlich, wissenschaftlich und technisch“ wie folgt zu beschreiben:

¹¹⁾ Die Kosten der Aufbereitung von 1 Mg LIB belaufen sich auf 416 €. Bei einem Schwarzmassenanteil von 44 Massen-% belaufen sich die Kosten für 1 Mg Schwarzmasse auf ca. 945 € (416 € / 0,44). Bei der erreichten Rückgewinnung von ca. 80 Massen-% der Schwarzmasse durch die Aufbereitungskaskade belaufen sich die tatsächlichen Kosten pro Mg produzierter Schwarzmasse auf 1.182 € (416 € / 0,44 / 0,8)

Erfolgsaussichten		
Wirtschaftlich	Wissenschaftlich	Technisch
<p>Kenntnisse im Bereich des Batterierecyclings und der mechanischen Aufbereitung ausbauen und durch Industrieberatung auch eine Stärkung von Unternehmen.</p> <p>Frühzeitige Erkennung von potentiellen Märkten aufgrund der nachhaltigen Gestaltung der gesamten Prozesskette von der Demontage bis zum Recycling und den Erfahrungsaustausch u. a. mit Industriepartnern</p> <p>Aus- und Weiterbildung von Fachkräften für die Batterierecyclingindustrie, um die Umsetzung zu beschleunigen</p>	<p>Publikation von Veröffentlichungen (siehe 5.)</p> <p>Nutzung der Erkenntnisse und von Anwendungsbeispielen in der Lehre und Ausbildung</p> <p>Datenaustausch mit Projekten (z. B. HydroLIBRec) aus dem greenBatt Cluster.</p> <p>Weiterführung des Forschungsansatzes in neuen Forschungsprojekten im Projektverlauf und direkten Anschluss</p> <p>Projektarbeit: Verbesserung der Abtrennung der Schwarzmasse von zerkleinerten Lithium-Ionen-Batterien mit Hilfe nassmechanischer Prozesse – abgeschlossen</p> <p>Bachelorarbeit: Verbesserung der Abtrennung der Separatorfolien von zerkleinerten Lithium-Ionen-Batterien mithilfe nassmechanischer Prozesse – abgeschlossen</p>	<p>Inhaltlicher Transfer der theoretischen Arbeit in die Praxis parallel zum Projektverlauf und im direkten Anschluss</p> <p>Unterstützung von Unternehmen zur Optimierung ihrer Verfahrenstechnik parallel zum Projekt und im direkten Anschluss</p> <p>Verbesserte Abtrennung der Schwarzmasse von den groben Feststoffen</p> <p>Entwicklung einer (nass-) mechanischen Aufbereitung von Batteriemodulen und -zellen</p>

4. Während der Laufzeit bekannt gewordene, relevante Ergebnisse Dritter

Die während der Projektlaufzeit bekannt gewordenen, relevanten Ergebnisse Dritter lassen sich folgenden Veröffentlichungen entnehmen. Die Erkenntnisse wurden bei der Planung und Durchführung von Untersuchungsreihen während des Projektes berücksichtigt (vgl. Abschnitt III).

Zorn, M., Flamme, S., Hams, S.: Weitergehende mechanische Aufbereitung von Lithium-Ionen-Batterien. In: Müll und Abfall 12/2023, S. 695-703, <https://muellundabfall.de/ce/weitergehende-mechanische-aufbereitung-von-lithium-ionenbatterien/detail.html>

Wilke, C., et al. "Influence of the Crusher Settings and a Thermal Pre-Treatment on the Properties of the Fine Fraction (Black Mass) from Mechanical Lithium-Ion Battery Recycling." Batteries 9.10 (2023): 514., <https://doi.org/10.3390/batteries9100514>

Kaas, A., et al. "Influence of different discharge levels on the mechanical recycling efficiency of lithium-ion batteries." Waste Management 172 (2023): 1-10., <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2023.08.042>

Kaas, A., Thomas Mütze, and Urs A. Peuker. "Review on zigzag air classifier." Processes 10.4 (2022): 764., <https://doi.org/10.3390/pr10040764>

Zorn, M., Flamme, S., Hams, S.: Lithium-Ionen-Batterien aus Elektrofahrzeugen in der Kreislaufwirtschaft. Bewertung von Verwertungsmöglichkeiten und Anforderungen an ein Labelingsystem. In: Müll und Abfall, 5/2022, S. 265 – 272, <https://doi.org/10.37307/j.18639763.2022.05.09>

Zorn, M.; Hams, S., Flamme, S.; et al.: An Approach for Automated Disassembly of Lithium-Ion Battery Packs and High-Quality Recycling Using Computer Vision, Labeling, and Material Characterization. Recycling 2022, 7, 48., <https://doi.org/10.3390/recycling7040048>

5. Erfolgte und geplante Veröffentlichungen

Im Folgenden sind die Veröffentlichungen im Rahmen des Projektes aufgeführt.

Fachartikel

Lfd. Nr.	Autoren	Titel	Journal, Volume, Issue, Page	DOI	Datum
1	Petzold, Moritz; Flamme, Sabine; Hams, Sigrid	Nass-Mechanische Aufbereitung von Lithium-Ionen-Batterien	Müll und Abfall, 55, 12, 688-694	10.37307/j.1863-9763.2023.12.03	12/2023

Konferenzbeitrag

Lfd. Nr.	Autoren	Titel	Typ (Poster, Präsentation)	Konferenz/Tagung	Datum
1	Petzold, Moritz; Hams, Sigrid; Flamme, Sabine	Wet-Mechanical Processing of End-of-Life Lithium-Ion Batteries to optimize the Recovery of Lithium and other Materials	Poster	IBPC Braunschweig	11/2022
2	Petzold, Moritz	Nassmechanische Zerkleinerung und Aufbereitung von Lithium-Ionen-Batterien aus Elektrofahrzeugen zur optimierten Lithium-Rückgewinnung	Präsentation	12. DGAW-Wissenschaftskongress Abfall- und Ressourcenwirtschaft	03/2023
3	Buchmann, Julius; Lechtenfeld, Christian; van Wickeren, Stefan; Petzold, Moritz; Winter, Martin; Nowak, Sascha	Comprehensive Characterization of Process Water in Lithium-Ion Battery Recycling - an Analytical Guide	Poster	ABAA - 14th International Conference on Advanced Lithium Batteries for Automobile Applications	11/2023
4	Buchmann, Julius; van Wickeren, Stefan; Petzold, Moritz; Flamme, Sabine; Winter, Martin; Nowak, Sascha	Wet Mechanical Treatment of Spent Lithium-Ion Batteries – Analytical Insights into Contaminated Process Water	Poster	APB – Advanced Battery Power Conference	04/2024

Sachbericht zum Verwendungsnachweis

Teil 3 – Erfolgskontrollbericht

Vorhabenbezeichnung: AURRELIA – Optimierung nasser Aufbereitungstechniken zur Rückgewinnung recyclingfähiger Fraktionen aus Lithium-Alt-Batterien – TV 2: Entwicklung eines mechanischen Aufbereitungsprozesses von Lithium-Alt-Batterien im nassen Milieu zur Optimierung der Verwertung der resultierenden Aufbereitungsfraktionen	
Zuwendungsempfänger: FH Münster, Institut für Infrastruktur, Wasser, Ressourcen, Umwelt (IWARU)	Förderkennzeichen 03XP0351B
Projektleiter*in Prof. Dr.-Ing. Sabine Flamme Dipl.-Biol. Sigrid Hams Moritz Petzold, M. Sc.	Laufzeit 01.01.2021 – 31.12.2023

1. Wissenschaftlich-technische Ergebnisse des Vorhabens, die erreichten Nebenergebnisse und die gesammelten wesentlichen Erfahrungen

Das Forschungsvorhaben AURRELIA hatte das Ziel, den Recyclingprozess von Post-Consumer Lithium-Ionen-Batterien (LIB) durch die Entwicklung geeigneter Verfahren entlang der Prozesskette von der mechanischen bis zur hydrometallurgischen Aufbereitung signifikant zu optimieren. Dabei sollte ein möglichst großer Anteil der Batteriebestandteile einem Recycling zugänglich gemacht werden. Zentrale Zielsetzung des Vorhabens war die recyclinggerechte und wirtschaftliche Aufbereitung der LIB, mittels geeigneter Zerkleinerungs- und weiterer Aufbereitungsverfahren. LIB (Zellen und Module) wurden (ggf. nach vorheriger Demontage) mit optimierter Schreddertechnik im nassen Milieu zerkleinert und anschließend in feste und flüssige Phasen separiert. So sollte eine stoffstromspezifische Weiterbehandlung der Materialströme und damit eine umfassende Rückgewinnung der LIB-Komponenten möglich werden. Im Vordergrund stand dabei insbesondere die Vermeidung von Lithiumverlusten.

Das IWARU verfolgte in dem entsprechenden Teilvorhaben folgende Ziele:

- Entwicklung eines mechanischen Aufschlusses von LIB-Modulen und -Zellen im nassen Milieu
- Adaption nassmechanischer Separationsprozesse zur Trennung der Feinfraktion (v. a. Aktivmasse) und groben Feststoffe; Erprobung und Adaption weiterer mechanischer Aufbereitungsprozesse für die grobe Feststofffraktion
- Optimierung des mechanischen Aufschlusses in Bezug auf die nachgelagerte Feststoffseparation und weiterer Recyclingschritte (z. B. Hydrometallurgie, Extraktionsverfahren)
- Verringerung der mit dem Aufschluss verbundenen Sicherheitsrisiken

2. Fortschreibung des Verwertungsplans, insbesondere zu folgenden Punkten (Geschäftsgeheimnisse des Zuwendungsempfängers brauchen nicht offenbart zu werden):

- a) **Erfindungen/Schutzrechtsanmeldungen und erteilte Schutzrechte, die vom Zuwendungsempfänger oder von am Vorhaben Beteiligten gemacht oder in Anspruch genommen wurden, sowie deren standortbezogene Verwertung (Lizenzen u.a.) und erkennbare weitere Verwertungsmöglichkeiten**

keine

- b) **Wirtschaftliche Erfolgsaussichten nach Projektende (mit Zeithorizont) – z. B. auch funktionale/wirtschaftliche Vorteile gegenüber Konkurrenzlösungen, Nutzen für verschiedene Anwendergruppen / -industrien am Standort Deutschland, Umsetzungs- und Transferstrategien**

Die wirtschaftlichen Erfolgsaussichten nach Projektende sind sehr positiv zu bewerten. Bis zum Jahr 2040 steigen die Rücklaufmengen an LIB von ca. 200.000 Mg/a auf über ca. 3.000.000 Mg/a in Europa, während Recyclingkapazitäten noch nicht in entsprechendem Umfang aufgebaut wurden. Die nass-mechanische Aufbereitung aus dem AURRELIA-Prozess kann dabei eine kostengünstige Alternative zur thermischen Deaktivierung oder mechanischen Aufbereitung unter Schutzgasatmosphäre werden. Weiter erlaubt die nass-mechanische Aufbereitung auch die Prozessierung von LIB, welche vorab nicht tiefenentladen und kurzgeschlossen wurden. Dies kann vor allem bei der Aufbereitung von Gerätebatterien angewandt werden, da sich hier bisher solche Vorbehandlungen ökonomisch und technisch nicht sinnvoll darstellen lassen.

Weitere Erfolgsaussichten sind folgende:

- Kenntnisse im Bereich des Batterierecyclings und der mechanischen Aufbereitung ausbauen und durch Industrieberatung auch eine Stärkung von Unternehmen,
- Frühzeitige Erkennung von potentiellen Märkten aufgrund der nachhaltigen Gestaltung der gesamten Prozesskette von der Demontage bis zum Recycling und den Erfahrungsaustausch u. a. mit Industriepartnern,
- Aus- und Weiterbildung von Fachkräften für die Batterierecyclingindustrie, um die Umsetzung zu beschleunigen.

- c) **Wissenschaftliche und/oder technische Erfolgsaussichten nach Projektende (mit Zeithorizont) – u. a. wie die geplanten Ergebnisse in anderer Weise (z. B. für öffentliche Aufgaben, Datenbanken, Netzwerke, Transferstellen etc.) genutzt werden können. Dabei ist auch eine etwaige Zusammenarbeit mit anderen Einrichtungen, Firmen, Netzwerken, Forschungsstellen etc. darzustellen**

- Nutzung der Erkenntnisse und von Anwendungsbeispielen in der Lehre und Ausbildung,
- Weiterführung des Forschungsansatzes in neuen Forschungsprojekten im Projektverlauf und direkten Anschluss,

- Nutzung der erzielten Netzwerkverbindungen zu anderen Forschungsinstituten, sowie Industrieunternehmen für die Beantragung und Durchführung von neuen Forschungsprojekten,
- Projekt- und Abschlussarbeiten zum Themenbereich (Nass-)Zerkleinerung und (Nass-)Mechanische Aufbereitung von Lithium-Ionen-Batterien.

d) Tabellarische Zusammenfassung von a-c

Lfd. Nr.	Bezeichnung	Zeithorizont
1	Transfer der Ergebnisse im Sinne einer Industrieberatung	Bis 6 Jahre nach Projektende
2	Aus- und Weiterbildung von Fachkräften für die Batterierecyclingindustrie	Bis 3 Jahre nach Projektende
3	Veröffentlichung in Fachzeitschriften, auf Fachkongressen und Veranstaltungen	Bis 2 Jahre nach Projektende
4	Nutzung der Erkenntnisse in der Lehre	Während der Projektlaufzeit und danach
5	Fach Austausch im Rahmen des Clusters	Während der Projektlaufzeit und danach
6	Weiterführung des Forschungsansatzes	Bis 4 Jahre nach Projektende

3. Wissenschaftliche und wirtschaftliche Anschlussfähigkeit für eine mögliche notwendige nächste Phase bzw. die nächsten innovatorischen Schritte zur erfolgreichen Umsetzung der Ergebnisse

Im Anschluss an das Projekt soll wie folgt an das Vorhaben angeknüpft werden:

- Vertiefung der Erkenntnisse und Transfer in die Industrie im Rahmen eines möglichen Folgeclusters greenBatt2
- Geplante Folgeprojekte mit Industriebeteiligung im Rahmen von Förderaufrufen, wie z. B. „clustergoesindustry“
- Initiierte Projekte, basierend u. a. auf den Erkenntnissen dieses Vorhabens, wie z. B. das bereits gestartete EFRE-Projekt „SeRoBat“

4. Angaben zu Arbeiten, die zu keiner Lösung geführt haben

Folgende Arbeiten haben zu keiner Lösung gefunden:

1. Mehrstufige Zerkleinerung

Mit Hilfe einer mehrstufigen Zerkleinerung von EV-Modulen wurde erwartet, den Anteil an Materialverbunden im Schredder-Output weiter zu reduzieren. Die dazu durchgeführten Versuche haben jedoch das Gegenteil gezeigt, weshalb keine weiteren Versuche hierzu durchgeführt wurden.

2. Trocken-mechanische Dichtentrennung mittels Windsichter

Mittels Windsichtung sollte nicht nur eine Abtrennung der massiven Gehäuseteile erfolgen, sondern auch eine Abtrennung der Kunststofffolien sowie anschließend eine Separation zwischen Aluminium- und Kupferfolien. Beides hat sich als nicht umsetzbar herausgestellt.

5. Angaben über die Einhaltung der Ausgaben- und der Zeitplanung. Abweichungen sind kurz zu begründen (bspw. bei vermindertem Mittelabruf).

Siehe finanzieller Verwendungsnachweis.

Berichtsblatt

1. ISBN oder ISSN	2. Berichtsart (Schlussbericht oder Veröffentlichung) Schlussbericht
3. Titel AURRELIA – Optimierung nasser Aufbereitungstechniken zur Rückgewinnung recyclingfähiger Fraktionen aus Lithium-Alt-Batterien – TV B: Entwicklung eines mechanischen Aufbereitungsprozesses von Lithium-Alt-Batterien im nassen Milieu zur Optimierung der Verwertung der resultierenden Aufbereitungsfraktionen	
4. Autor(en) [Name(n), Vorname(n)] Prof. Dr.-Ing. Sabine Flamme Dipl.-Biol. Sigrid Hams Moritz Petzold, M. Sc.	5. Abschlussdatum des Vorhabens 31.12.2023
	6. Veröffentlichungsdatum
	7. Form der Publikation Schlussbericht
8. Durchführende Institution(en) (Name, Adresse) FH Münster – Institut für Infrastruktur, Wasser, Ressourcen, Umwelt (IWARU) Corrensstr. 25, 48149 Münster	9. Ber. Nr. Durchführende Institution
	10. Förderkennzeichen 03XP0351B
	11. Seitenzahl 25
12. Fördernde Institution (Name, Adresse) Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) 53170 Bonn	13. Literaturangaben 6
	14. Tabellen 9
	15. Abbildungen 16
16. Zusätzliche Angaben	
17. Vorgelegt bei (Titel, Ort, Datum)	
18. Kurzfassung Das Forschungsvorhaben AURRELIA hatte das Ziel, den Recyclingprozess von Post-Consumer Lithium-Ionen-Batterien (LIB) durch die Entwicklung geeigneter Verfahren entlang der Prozesskette von der mechanischen bis zur hydrometallurgischen Aufbereitung signifikant zu optimieren. Dabei sollte ein möglichst großer Anteil der Batteriebestandteile einem Recycling zugänglich gemacht werden. Im Sinne eines Zero-Waste-Prozesses, aber auch um die Verwertungsquoten der EU-Batterieverordnung (Lithium: 50 Massen-% bis 2027; 80 Massen-% bis 2031) zu erreichen, sollten in dem Projekt hohe Ausbeuten und Reinheiten der gewonnenen Produkte erzielt werden. Um die o. g. Verwertungsquote für Lithium, was grundsätzlich wasserlöslich ist, bis 2031 zu erreichen, wurde im vorliegenden Teilprojekt ein mechanischer Aufbereitungsansatz im nassen Milieu angewendet. Zentrale Zielsetzung des Vorhabens war die recyclinggerechte und wirtschaftliche Aufbereitung der LIB, mittels geeigneter Nass-Zerkleinerungs- und weiterer Aufbereitungsverfahren. Der Aufschluss mittels Nass-Zerkleinerung von LIB-Modulen aus der Elektromobilität funktioniert vor allem bei kleinen Austragssieben (15, 20 mm) sowie bei Zellgehäusen, welche nicht prismatisch aufgebaut sind. Hierbei konnte der zurückbleibende Anteil der Materialverbunde im Schredder-Output auf 4 bzw. 8 Massen-% reduziert werden. Weiter kann mittels mehrstufiger, nassmechanischer Aufbereitung über 80 Massen-% der Aktivmaterialien zurückgewonnen werden ohne eine thermische Vorbehandlung vorzuschalten. Damit verbundene Sicherheitsrisiken, in Form von austretenden Gasen oder Brandpotentialen, wurden durch die angewendete Nass-Zerkleinerung und die installierte Aktivkohlefilterung der Abluft maßgeblich reduziert. Über zusätzliche Wasch- und Siebprozesse konnten mind. 80 Massen-% der Schwarzmasse zurückgewonnen werden. Weiter wurde mittels Schwimm-Sink-Trennung eine Separation der Grobfraktion in Kunststoff- und Metallpartikel realisiert.	
19. Schlagwörter Recycling, Lithium-Ionen-Batterien, Kreislaufwirtschaft, Nass-Mechanische Aufbereitung, Batterierecycling, Ressourceneffizienz	
20. Verlag	21. Preis