

Schlussbericht

| | |
|---|--|
| Vorhabenbezeichnung Ultrabatt – Entwicklung einer Li-Ionen-Batterie (~300 Wh/kg) mit dicken Elektroden (~3 mm) durch einen neuartigen Herstellungsprozess | |
| Teilvorhabenbezeichnung Erforschung eines Formier- und Reifungsprozesses zur Generierung der Grenzschichten SEI und CDL mit dem Ziel einer hohen Langlebigkeit der Batterie mit einer minimalen Nennkapazität von 85-90% nach 5.000 Ladezyklen. | |
| Zuwendungsempfänger Fraunhofer-Gesellschaft zur Förderung der angewandten Forschung eV | Förderkennzeichen 16BZF356C |
| Laufzeit des Vorhabens 01.08.2022 - 31.01.2025 | Berichtszeitraum 01.08.2022 - 31.01.2025 |

I. Kurze Darstellung des Vorhabens

1. Aufgabenstellung

Ziel des Projekts „Ultrabatt“ war die Entwicklung einer innovativen, umweltfreundlichen und leistungsfähigen Lithium-Ionen-Batterie mit ultradicken Elektroden (~3 mm), einer gravimetrischen Energiedichte von etwa 300 Wh/kg und einer Langzeitstabilität von mindestens 85–90 % Restkapazität nach 5.000 Ladezyklen.

Im Rahmen des Teilvorhabens des Fraunhofer IPA bestand die zentrale Aufgabe darin, einen optimierten Formier- und Reifungsprozess für die neuartige Batteriezelle zu entwickeln und umfassend zu validieren. Dabei standen insbesondere folgende Fragestellungen im Vordergrund:

- Entwicklung eines stabilen, reproduzierbaren Formierungsverfahrens zur optimalen Ausbildung der SEI (Solid Electrolyte Interface) und CDL (Cathodic Decomposition Layer)
- Charakterisierung und Optimierung elektrochemischer und thermischer Zellparameter
- Simulation und Modellierung des Zellverhaltens zur systematischen Analyse der relevanten Einflussfaktoren (Elektroden Dicke, Formierungsbedingungen, SEI-Wachstum, thermische Stabilität)

2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Zum Projektstart lagen grundlegende Erkenntnisse über elektrochemische Alterungsmechanismen von Lithium-Ionen-Batterien sowie Methoden zur Simulation von Zellprozessen (z.B. mit PyBaMM) vor. Die spezifischen Herausforderungen ultradicker Elektroden, insbesondere hinsichtlich Formierung und SEI-Ausbildung, waren jedoch kaum

dokumentiert und erforderten völlig neue Ansätze. Am Fraunhofer IPA bestand bereits Erfahrung mit Labor- und Pilotfertigung von Batteriezellen, insbesondere im Bereich Rundzellenproduktion. Infrastruktur und Kompetenz zur Durchführung elektrochemischer Analysen, thermischer Untersuchungen und simulationsbasierter Modellierung waren vorhanden. Eine wesentliche Voraussetzung für das Vorhaben war die Kooperation im Verbundprojekt, insbesondere der Austausch und Abstimmung mit den Partnern Universität Stuttgart, Alfred Hermann GmbH & Co. KG, DORST Technologies GmbH & Co. KG und Sobek Motorsporttechnik GmbH & Co. KG.

3. Planung und Ablauf des Vorhabens

Der ursprüngliche Projektplan sah vor, innerhalb von zwei Jahren (01.08.2022 – 31.07.2024) alle definierten Arbeitspakete zu bearbeiten und abzuschließen. Die zentralen Arbeitspakete des IPA umfassten insbesondere die Entwicklung eines optimierten Formierungsprozesses (AP 6.1), die Untersuchung der SEI- und CDL-Bildung (AP 6.2), die Entwicklung eines Prüfverfahrens zur Charakterisierung der Zelle (AP 6.3), die Analyse der Isolationseigenschaften (AP 6.4), Langzeitzyklisierung und Alterungsverhalten (AP 6.5), Optimierung des Zellaufbaus (AP 6.6) sowie die thermische Modellierung (AP 6.7).

Im Verlauf zeigte sich, dass die experimentelle Umsetzung aufgrund unerwarteter technischer Herausforderungen (Zellinstabilitäten, Elektrolytverluste, mechanische Probleme) deutlich aufwendiger war als geplant. Daher wurde die Projektlaufzeit um sechs Monate (bis 31.01.2025) kostenneutral verlängert, um insbesondere die Arbeiten zu Zellaufbau und Formierungsprozess weiterzuführen. Parallel dazu wurde eine intensive simulationsgestützte Bearbeitung eingeführt, um die experimentellen Ergebnisse systematisch zu ergänzen und zu validieren.

4. Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde

Bekannte Konstruktionen, Verfahren und Schutzrechte:

Im Projekt wurden Verfahren zur Elektrodenherstellung mittels Trockenpressverfahren genutzt, die grundsätzlich aus der Pulvermetallurgie bekannt sind. Ebenfalls wurde auf bestehendes Wissen zu Batteriezellgehäusen in Halbschalentechnik zurückgegriffen. Zudem wurden elektrochemische Modellierungsansätze (DFN-Modell, SEI-Submodelle) verwendet, die bereits in PyBaMM implementiert sind. Hierzu gehörten:

- DFN-Modell (Doyle-Fuller-Newman): etabliert zur realistischen Simulation elektrochemischer Zellen
- SEI-Wachstumsmodelle („reaction-limited“, „solvent-diffusion-limited“): Modelle, die sich in der Lithium-Ionen-Forschung bewährt haben

Verwendete Fachliteratur und Informationsquellen:

Als zentrale Grundlage diente die Literaturdatenbank Chen2020 zur Parameterdefinition und Validierung der Simulationen. Weitere wesentliche Quellen waren wissenschaftliche Veröffentlichungen zur SEI-Bildung und Modellierung (z.B. Marquis et al., Yang et al.) sowie etablierte Normen und Standards (IEC-Standardverfahren für die elektrochemische Charakterisierung).

Informations- und Dokumentationsdienste:

- Wissenschaftliche Datenbanken (z.B. Scopus, Web of Science, ScienceDirect)

- Literaturplattformen und Dokumentationsdienste des Fraunhofer IPA und Universität Stuttgart
- Open-Source-Modellierungsplattform PyBaMM mit umfangreicher Community-Dokumentation

5. Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Das Fraunhofer IPA arbeitete während des gesamten Vorhabens intensiv und eng mit den Verbundpartnern zusammen. Über die Konsortialpartner hinaus bestand keine weitere Zusammenarbeit mit externen Stellen. Die enge Kooperation innerhalb des Konsortiums gewährleistete einen kontinuierlichen und effizienten Informationsaustausch, wodurch auftretende Herausforderungen frühzeitig erkannt und gemeinsam bearbeitet werden konnten. Die projektinternen Schnittstellen zu den Konsortialpartnern waren insbesondere:

- **Universität Stuttgart:** Abstimmung zu Elektrodenmaterialien, Separatorentwicklung und Zellaassemblierung
- **Alfred Hermann GmbH & Co. KG:** Austausch zur Zellgehäusetechnik und Verklebungsverfahren
- **DORST Technologies GmbH & Co. KG:** Zusammenarbeit im Bereich des Kaltpressverfahrens und der Herstellung der Vorpresslinge
- **Sobek Motorsporttechnik GmbH & Co. KG:** Regelmäßige Absprachen bezüglich praxisorientierter Anforderungen und Integration in das Gesamtsystem

II. Eingehende Darstellung

1. Erzielte Ergebnisse (nach Arbeitspaketen)

Im Folgenden wird die Bearbeitung der zentralen Arbeitspakete des Fraunhofer IPA detailliert dargestellt und bewertet.

AP 6: Entwicklung eines geeigneten Formierprozesses, Validierung der Zellfunktion sowie umfangreiche Charakterisierung der Zellparameter und Festlegung der optimalen Betriebsbedingungen

AP 6.1: Entwicklung eines Formierprozesses und optimale Einstellung der Prozessparameter (bspw. Stromstärke, Spannung, Temperatur) zur Beeinflussung der Grenzschichtbildung zwischen dem Elektrolyten und den Aktivmaterialien während des ersten Ladezyklus

Im Fokus dieses Arbeitspakets stand die Entwicklung eines speziell auf ultradünne Elektroden (~3 mm) zugeschnittenen Formierprozesses. Ziel war es, geeignete Parameter für Strom, Spannung, Temperatur und Zyklusführung zu identifizieren, um die gezielte Ausbildung einer stabilen Solid Electrolyte Interphase (SEI) zu ermöglichen.

Bereits im Zwischenbericht 2023 wurde eine umfassende Literaturlauswertung dokumentiert, welche die Relevanz niedriger Stromdichten ($\leq 0,05\text{C}$), einer moderaten Spannungsobergrenze (3,65 – 4,0 V) sowie konstanter Formierungstemperaturen (20 °C) bestätigte. Ergänzt wurde dies durch Erkenntnisse zur Bedeutung von Multi-Cycle-Strategien, die eine schrittweise und homogenere SEI-Bildung ermöglichen und Nebenreaktionen reduzieren. Basierend darauf wurde das folgende spezifische Formierprotokoll erarbeitet:

Tabelle 1: Übersicht des entwickelten Formierprotokolls für Lithium-Ionen-Zellen mit ultradünnen Elektroden. Das Protokoll basiert auf einer Multi-Cycle-Strategie mit kontrollierter Stromdichte, spezifischem Spannungsfenster und konstanter Temperatur zur gezielten SEI-Ausbildung und Reduktion gasinduzierter Nebenreaktionen.

| Schritt | Parameter | Beschreibung |
|-----------------|------------------|---|
| Initiales Laden | 0.05C bis 3.8 V | Langsames Laden zur kontrollierten SEI Ausbildung |
| Ruhephase | 1 h | Diffusionsausgleich |
| Entladen | 0.05C bis 2.50 V | Zyklischer Belastungsimpuls für SEI-Verdichtung |
| Ruhephase | 1 h | Stabilisierung |
| Wiederholungen | 3 Zyklen | Multi-Cycle-Strategie zur stufenweisen SEI-Ausbildung |
| Temperatur | 20 °C konstant | Minimierung gasinduzierter Instabilitäten |

Es umfasst drei Lade-/Entladezyklen bei 0,05C mit Spannungsgrenzen zwischen 2,5 V und 3,8 V (bzw. 4,0 V) sowie jeweils einstündige Ruhephasen, um Diffusions- und Reaktionsgleichgewichte zu ermöglichen. Die in diesem Zusammenhang erstmals durchgeführte Simulation mit PyBaMM (siehe Zwischenbericht, AP 6.3) bestätigte die charakteristische Strom- und Spannungsentwicklung des gewählten Protokolls und ermöglichte eine fundierte Einschätzung der SEI-Dickenentwicklung in Abhängigkeit verschiedener Modellparameter (siehe Abbildung 1).

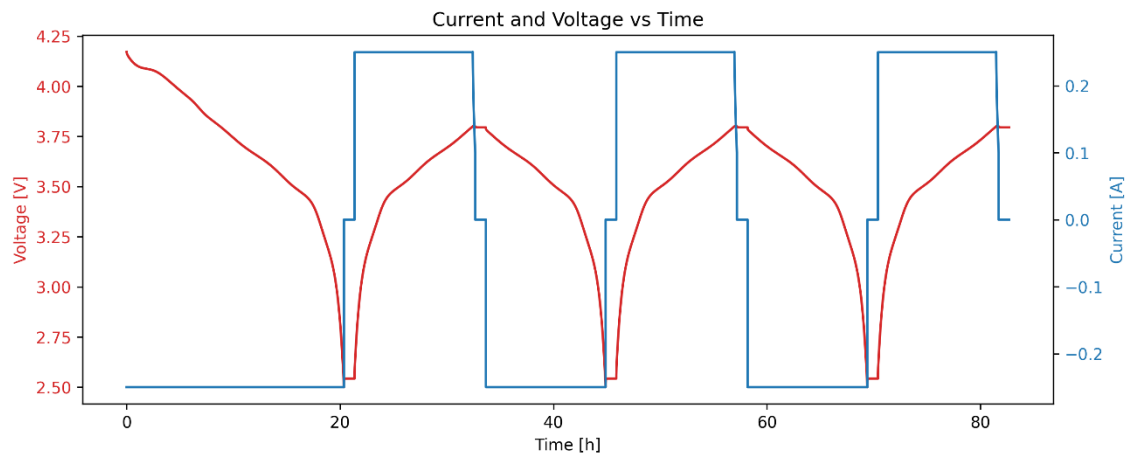


Abbildung 1: Strom- und Spannungsverlauf während des entwickelten Formierprozesses. Sichtbar ist die periodische Abfolge von Lade- und Entladephasen bei 0,05C mit jeweils anschließender Ruhezeit.

AP 6.1 – Abgleich mit den Zielen: Das Ziel, ein Formierprotokoll für ultradicke Elektroden zu entwickeln und die entscheidenden Einflussparameter zu bestimmen, wurde erfolgreich erreicht. Die experimentelle Umsetzung zeigte jedoch strukturelle Schwächen im Zellaufbau auf, die in den nachfolgenden Arbeitspaketen analysiert (AP 6.2) und adressiert (AP 6.6) wurden. Die Kombination aus Literaturrecherche, Modellierung und erster Anwendung stellt eine solide Basis für zukünftige Verbesserungen dar.

AP 6.2: Erforschung der Bildung der Grenzschichten SEI (Solid Elektrolyt Interface) und CDL (Cathodic Decomposition Layer) der Li-Ionen-Zelle zur Verbesserung des Alterungsverhaltens mittels des entwickelten Formierprozesses und Analyse mittels REM

Ziel dieses Arbeitspakets war die Analyse der Grenzschichtbildung in Lithium-Ionen-Zellen mit ultradicken Elektroden, insbesondere der SEI (Solid Electrolyte Interphase) auf der Anode und der CDL (Cathodic Decomposition Layer) auf der Kathode. Diese interphasischen Strukturen nehmen maßgeblichen Einfluss auf die Lebensdauer und Alterungsstabilität von Batteriezellen und entstehen primär im Rahmen des Formierprozesses. Aufbauend auf AP 6.1 wurde das entwickelte Formierprotokoll experimentell implementiert und auf eine prototypische Zelle mit ultradicker Elektrode angewendet. Trotz korrekter Interkalation und initialer Zellfunktion führten systemische Probleme wie Elektrolytverlust durch kapillaren Austritt, unzureichende Elektrolytdurchtränkung, Kontaktverlust infolge Gasbildung sowie fehlende mechanische Zellstabilität dazu, dass keine belastbaren Aussagen zur Schichtentwicklung getroffen werden konnten. Diese Erkenntnisse wurden in AP 6.6 aufgegriffen und führten zur Entwicklung eines modifizierten Zellaufbaus mit Gasreservoir, nachträglicher Elektrolytbefüllung und verbesserter Versiegelungstechnik. Diese Ergebnisse verdeutlichen, dass ein geeigneter Formierprozess allein nicht ausreicht, um stabile SEI- und CDL-Schichten zu erzeugen, wenn die zugrunde liegende Zellarchitektur konstruktive Schwächen aufweist. Trotz dieser Verbesserungen blieben die Ergebnisse der Folgeversuche hinter den Erwartungen zurück und zeigten weiterhin keine stabile elektrochemische Zyklierfähigkeit. Aufgrund dieser Limitierungen wurde in AP 6.2 ein alternativer simulativer Ansatz zur Untersuchung der SEI- und CDL-Entwicklung gewählt, um die Erkenntnisziele des Arbeitspakets dennoch erreichen zu können.

Simulativer Alternativansatz mit PyBaMM

Vor diesem Hintergrund wurde im Rahmen von AP 6.2 ein simulativer Alternativansatz auf Basis der Open-Source-Plattform PyBaMM entwickelt, um die SEI- und CDL-Bildung modellgestützt zu analysieren und gezielte Erkenntnisse zur Prozessoptimierung zu gewinnen. Aufbauend auf den im Zwischenbericht 2024 dargestellten SEI-Wachstumsvergleichen (vgl. Abbildung 2), bei denen verschiedene limitierende Mechanismen wie reaktions-, diffusions- oder elektronen-migrationslimitiert untersucht wurden, konnte die Auswahl eines geeigneten Modells auf Basis des interstitial-diffusion-limited growth als für die realen Gegebenheiten in ultradicken Elektroden besonders relevant eingegrenzt werden. Diese Methodik wurde in AP 6.2 gezielt weiterentwickelt und durch neue Modellrechnungen ergänzt, um nicht nur das SEI-Wachstum, sondern auch die daraus resultierende alterungsrelevante Kapazitätsabnahme unter variierenden Formierbedingungen zu untersuchen. Die Simulationen umfassten u. a. folgende Aspekte:

- Vergleich von formierten und unformierten Zellen unter identischen Bedingungen hinsichtlich Zyklieverhalten, SEI-Dickenentwicklung und Kapazitätsverlusten,
- zeitaufgelöste Modellierung der SEI-Bildung über fünf bzw. 125 Ladezyklen, wobei insbesondere die Dynamik der SEI-Dicke analysiert wurde (vgl. Abbildung 2),
- Gegenüberstellung von SEI-bedingtem und lithiumplating-induziertem Kapazitätsverlust über den Zyklusverlauf zur Identifikation dominanter Degradationspfade (vgl. Abbildung 3),
- Integration thermischer Kopplung, um lokale Hotspots und deren Einfluss auf SEI-Wachstum und Alterungsmechanismen zu quantifizieren (vgl. Abbildung 4).

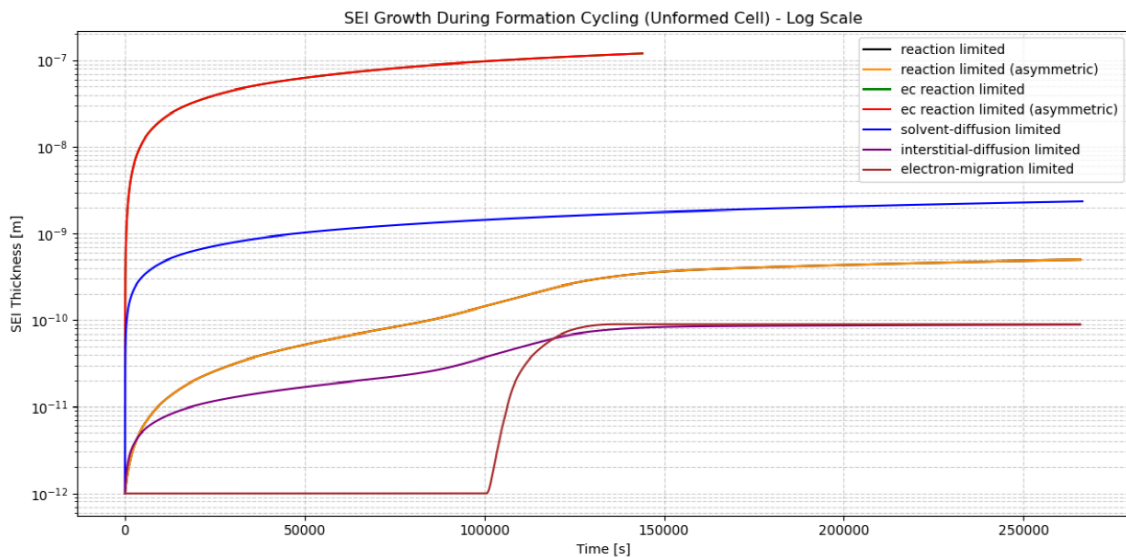


Abbildung 2: Vergleich verschiedener SEI-Wachstumsmodelle während der Formierung einer unformierten Zelle. Die Modelle zeigen deutliche Unterschiede in der SEI-Dicke und Wachstumsdynamik.

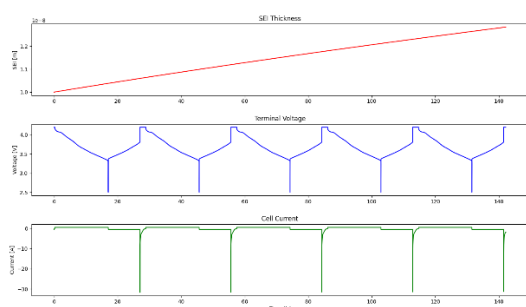


Abbildung 3: SEI-Wachstum über fünf Zyklen bei optimiertem Formierprotokoll. Spannung und Stromverlauf zeigen ein stabiles Zyklierverhalten bei moderatem SEI-Zuwachs.

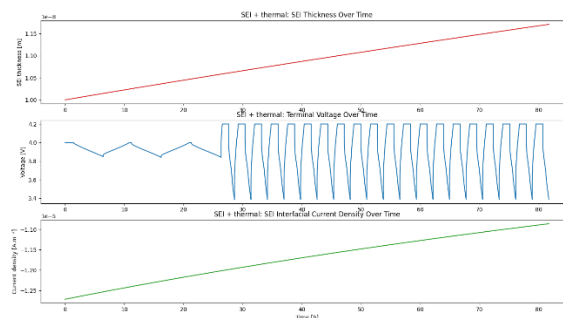


Abbildung 4: Thermisch gekoppelte Simulation der SEI-Bildung. Lokale Temperaturanstiege verstärken die interfaciale Stromdichte und beschleunigen das SEI-Wachstum.

Die Ergebnisse zeigen, dass ein Großteil der Anfangsdegradation auf die initiale SEI-Ausbildung zurückzuführen ist. Während bei idealisierten Formierprotokollen (z. B. 0,05C, 2,5–4,0 V, 20 °C) eine vergleichsweise dünne, gleichmäßige SEI ausgebildet wurde, führten vereinfachte Ladeprotokolle oder zu hohe Stromdichten zu einem beschleunigten SEI-Wachstum, erhöhten Kapazitätsverlusten und ungünstigen thermischen Effekten. In Kombination mit der aus AP 6.1 bekannten empirischen Erfahrung, dass strukturelle Zellschwächen die SEI-Bildung stark limitieren, unterstreichen diese Modellierungen den Stellenwert eines simulativ begleiteten Formierdesigns, insbesondere für neuartige Zellarchitekturen.

AP 6.2 – Abgleich mit den Zielen: Das ursprüngliche Ziel bestand in der Analyse der SEI- und CDL-Bildung mittels REM sowie der Ableitung optimaler Betriebsbedingungen für Einzelzellen und Zellverbunde. Aufgrund experimenteller Einschränkungen, wie unzureichender Zellstabilität und Undichtigkeiten, konnte die REM-basierte Analyse nicht realisiert werden. Stattdessen wurde erfolgreich ein alternativer simulativer Ansatz auf Basis von PyBaMM implementiert. Dieser ermöglichte orts- und zeitaufgelöste Aussagen zur SEI-Dickenentwicklung, zur thermischen Belastung und zum kapazitätsrelevanten Alterungsverhalten. Damit wurden die Zielsetzungen auf methodisch angepasstem Weg teilweise erreicht, an anderer Stelle aber sogar erweitert.

AP 6.3: Entwicklung eines Prüf- und Charakterisierungsvorgehens zur Ermittlung der Leistungsparameter wie z.B. Spannung, Kapazität und Selbstentladungsrate auf Basis von IEC-Richtlinien

Ziel dieses Arbeitspakets war die Entwicklung eines systematischen Prüf- und Charakterisierungsverfahrens zur quantitativen Bestimmung relevanter Zellparameter wie Spannungslage, Kapazität, Zyklenstabilität und Degradationsverhalten. Grundlage dafür bildeten sowohl praxisnahe Lade-/Entladeprofile auf Basis der IEC 61960-3 als auch simulative Untersuchungen zur Alterung. Auf Basis der in AP 6.2 entwickelten Modelle wurde der Einfluss kontinuierlicher Lade-/Entladezyklen auf das SEI-Wachstum und die Spannungsstabilität untersucht. Abbildung 1 zeigt exemplarisch den Verlauf von SEI-Dicke, Zellspannung und Zellstrom über einen Zeitraum von mehr als 5000 Stunden. Die Daten deuten auf eine logarithmisch abklingende Zunahme der SEI-Dicke hin, wobei die Zellspannung trotz wachsender Grenzschicht weitgehend stabil bleibt. Diese Entwicklung ist Ausdruck einer sich selbst

begrenzenden SEI-Ausbildung bei moderater Strombelastung und ausreichender Temperaturkontrolle.

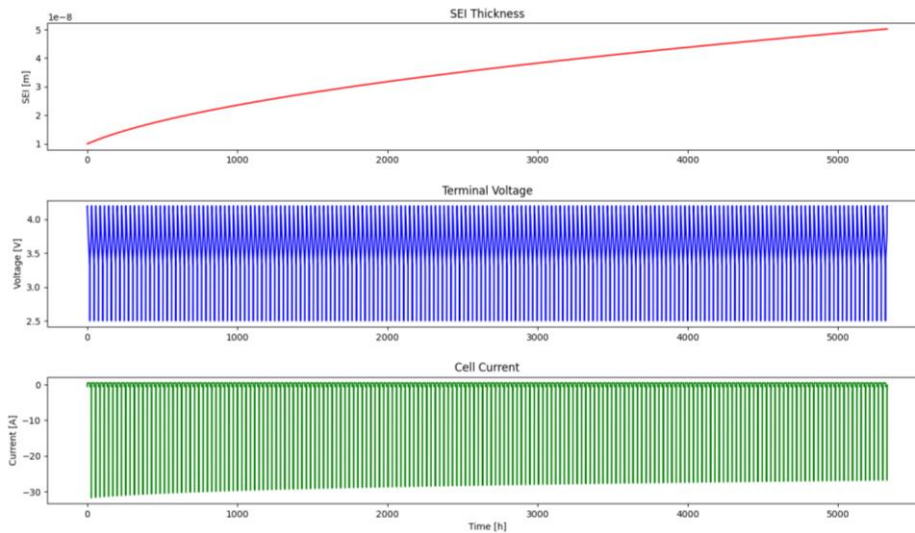


Abbildung 5: Zeitliche Entwicklung von SEI-Dicke, Zellspannung und Zellstrom über 5000 Stunden. Deutlich erkennbar ist das kontinuierliche, aber abnehmende Wachstum der SEI-Schicht bei stabilen Betriebsbedingungen.

Ergänzend dazu wurde in Abbildung 6 eine differenzierte Analyse der Degradationsmechanismen vorgenommen, bei der der Kapazitätsverlust in seine ursächlichen Bestandteile zerlegt wurde. Die modellbasierte Darstellung erlaubt eine getrennte Betrachtung reversibler und irreversibler Kapazitätsverluste, jeweils differenziert nach SEI-Wachstum und Lithium-Plating. Dadurch kann nicht nur die zeitliche Entwicklung des Gesamtverlustes verfolgt werden, sondern auch eine quantitative Bewertung der jeweils dominanten Alterungsmechanismen erfolgen.

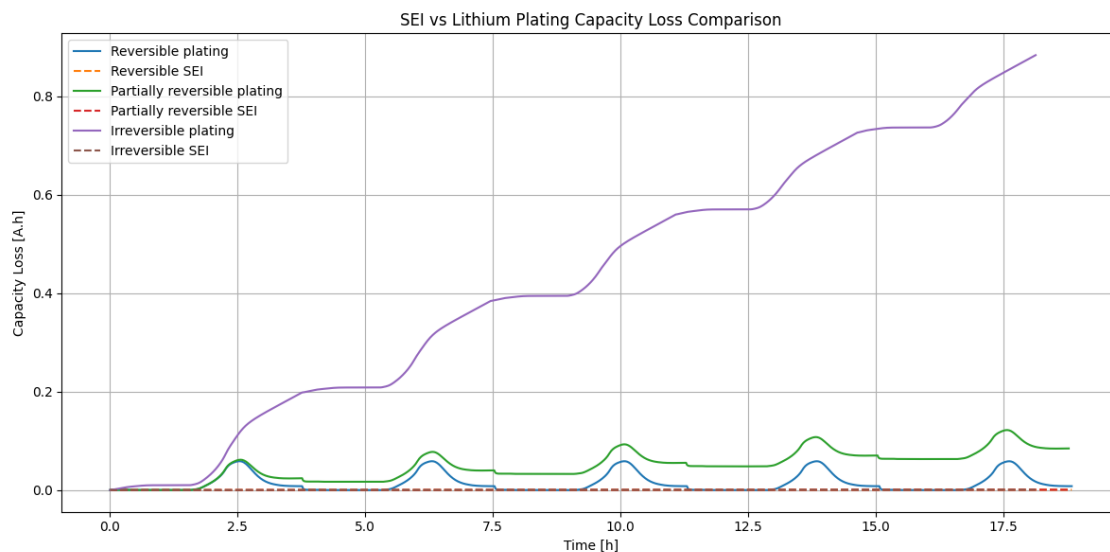


Abbildung 6: Vergleich der Kapazitätsverluste infolge reversibler und irreversibler SEI- und Lithium-Plating-Prozesse. Dominanter Alterungsmechanismus ist das irreversible Lithium-Plating.

Die Simulationsergebnisse zeigen, dass insbesondere das irreversible Lithium-Plating bereits in den ersten Ladezyklen einen markanten Beitrag zur Degradation leistet. Dieser Effekt akkumuliert sich mit jeder weiteren Belastung und übersteigt im Verlauf deutlich die Beiträge anderer Mechanismen. Die reversible und teilweise reversible Ablagerung von Lithium hingegen bleibt auf einem deutlich niedrigeren Niveau, was auf eine teilweise Rücklösbarkeit dieser Ablagerungen hindeutet, jedoch keine vollständige Regeneration erlaubt.

Demgegenüber zeigen die SEI-bezogenen Verluste, sowohl reversibel als auch irreversibel, ein vergleichsweise flaches und weitgehend konstantes Niveau. Diese Ergebnisse bestätigen die Annahme aus AP 6.2, dass ein optimierter Formierprozess zu einer stabilen und wenig dynamischen SEI-Ausbildung führen kann, sofern geeignete Spannungsfenster, Stromdichten und Temperaturen eingehalten werden. Die SEI trägt damit zwar zur Anfangsdegradation bei, zeigt jedoch unter stabilen Bedingungen keine exponentielle Zunahme und kann daher als kontrollierbar gelten. Insgesamt verdeutlicht Abbildung 2 die zentrale Bedeutung des Lithium-Platings als kritischem Alterungsmechanismus für die betrachteten Zellkonzepte. Für zukünftige Optimierungen ergeben sich daraus zwei wesentliche Implikationen: Erstens muss die Plating-Neigung insbesondere in den frühen Ladezyklen durch geeignete Ladeprofile begrenzt werden. Zweitens muss die Zellarchitektur – insbesondere die Elektrodenstruktur und deren Balancierung – so gestaltet sein, dass kritische Stromdichten an der Grenzfläche vermieden werden. In AP 6.5 wird dieser Zusammenhang weiter vertieft und anhand strukturmechanisch-gekoppelter Modelle untersucht. Diese Ergebnisse zeigen, dass die Kombination aus modellbasierten SEI-Analysen (siehe AP 6.2) und standardisierten Prüfverfahren ein robustes Instrumentarium darstellt, um Alterungsmechanismen frühzeitig zu identifizieren und über angepasste Ladeprofile gezielt zu beeinflussen.

AP 6.3 – Abgleich mit den Zielen: Ziel war die Entwicklung eines Prüf- und Charakterisierungsvorgehens zur Bewertung der Zellparameter wie Spannung, Kapazität, Innenwiderstand und Selbstentladungsrate. Das geplante Messkonzept konnte in wesentlichen Teilen umgesetzt werden. Es wurde ein systematisches Prüfprotokoll entwickelt und an funktionsfähigen Prototypenzellen erprobt. Dabei standen vor allem zyklische Kapazitätsmessungen und die Ableitung der Innenwiderstandsentwicklung im Fokus. Ergänzend wurden simulative Methoden eingesetzt, um die experimentellen Befunde zu stützen und zu interpretieren. Aufgrund der begrenzten elektrochemischen Stabilität der Zellen konnten einzelne Zielgrößen, insbesondere zur Selbstentladung, nicht vollständig untersucht werden. Die wesentlichen methodischen Grundlagen zur Zellcharakterisierung wurden jedoch gelegt.

AP 6.4: Analyse und Charakterisierung der isolierenden Eigenschaften der entwickelten Li-Ionen-Zelle unter extremen Umgebungsbedingungen in einer Testkammer

Ziel des Arbeitspakets war die Bewertung der elektrischen Isolation zwischen den beiden stromführenden Halbschalen der entwickelten Zelle unter verschiedenen Temperaturbedingungen. Dies diente der Verifikation der strukturellen Integrität des Klebe- und Isolationssystems bei Belastung durch typische Extrembedingungen.

Die im Zwischenbericht 2024 dokumentierte Methodik umfasste:

- Zwei unterschiedliche Verklebungs- und Isolationsstrategien (Variante A: Klebeband plus UV-Kleber; Variante B: Epoxidharz mit optionaler Polyimidabdeckung),

- Klimatische Vorbelastung der Probenzellen bei -30 °C , $+25\text{ °C}$ und $+90\text{ °C}$ über 24 Stunden in der Klimakammer,
- Nachfolgende Hochspannungsprüfung mit 5 V Gleichspannung bei 1 mA Strombegrenzung zur Leckstromermittlung.

Beide getesteten Varianten konnten eine stabile elektrische Isolation sicherstellen, wobei Variante B (Epoxidharz mit Polyimid) eine besonders geringe Leckstromrate bei gleichzeitig hoher mechanischer Stabilität zeigte. Selbst unter erhöhter thermischer Belastung blieb der Stromfluss unterhalb der Zielmarke von $1\text{ }\mu\text{A}$. Visuell konnten keine Delaminationen oder strukturelle Veränderungen festgestellt werden. Die Ergebnisse bestätigen, dass die eingesetzten Isolationskonzepte auch bei thermischer Belastung eine sichere Trennung der Halbschalen gewährleisten. Variante B wurde daraufhin als bevorzugte Lösung für den finalen Zellaufbau übernommen.

AP 6.4 – Abgleich mit den Zielen: Das Ziel, die isolierenden Eigenschaften der entwickelten Li-Ionen-Zelle unter extremen Umgebungsbedingungen zu analysieren, wurde erreicht. Es wurden zwei verschiedene Verklebungs- und Isolutionsstrategien untersucht und mittels klimatischer Vorbelastung sowie Hochspannungsprüfung systematisch bewertet. Die Ergebnisse zeigten, dass insbesondere die Variante mit Epoxidharz und Polyimidabdeckung eine zuverlässige elektrische Isolation gewährleistet – auch bei Temperaturen bis $+90\text{ °C}$. Die Untersuchung bestätigte die strukturelle Integrität des gewählten Dichtungskonzepts und erlaubte die Ableitung einer bevorzugten Lösung für den finalen Zellaufbau. Das angestrebte Ziel, ein funktionsfähiges Isolationssystem für die Halbschalenzellen zu qualifizieren, wurde damit in vollem Umfang erfüllt.

AP 6.5: Charakterisierung des Kapazitätsverlustes und des Innenwiderstandes der Li-Ionen-Zelle mittels Analyse einer festgelegten Anzahl von Batterieent- und -beladezyklen

Die Zielsetzung von AP 6.5 bestand in der quantitativen Charakterisierung des Zellverhaltens über eine simulierte Lebensdauer von bis zu 500 Lade- und Entladezyklen. Untersucht wurden insbesondere die kapazitive Alterung, der Innenwiderstandsanstieg und die thermische Stabilität bei zyklischer Belastung im Bereich von 5–95 % SoC bei 25 °C und 1 C Stromrate. Aufbauend auf den in AP 6.4 entwickelten thermischen und elektrochemischen Modellen konnte eine differenzierte Bewertung der Alterungsmechanismen vorgenommen werden.

In der Gesamtsimulation (Abbildung 7) wurden alle relevanten Prozessgrößen, wie Zellspannung, Temperatur, Zellstrom sowie reversible, irreversible und ohmsche Wärmeentwicklung, über 220 h simulierter Zyklisierung ausgewertet. Auffällig war der ausgeprägte Anstieg der ohmschen Verluste bei zunehmender Zyklenzahl, während die Temperaturkurve insgesamt eine moderate Erhöhung zeigte. Dies spricht für eine zunehmende Polarisierung der Zelle infolge wachsender interner Widerstände, was sich direkt auf die Energieeffizienz und Wärmebilanz auswirkt.

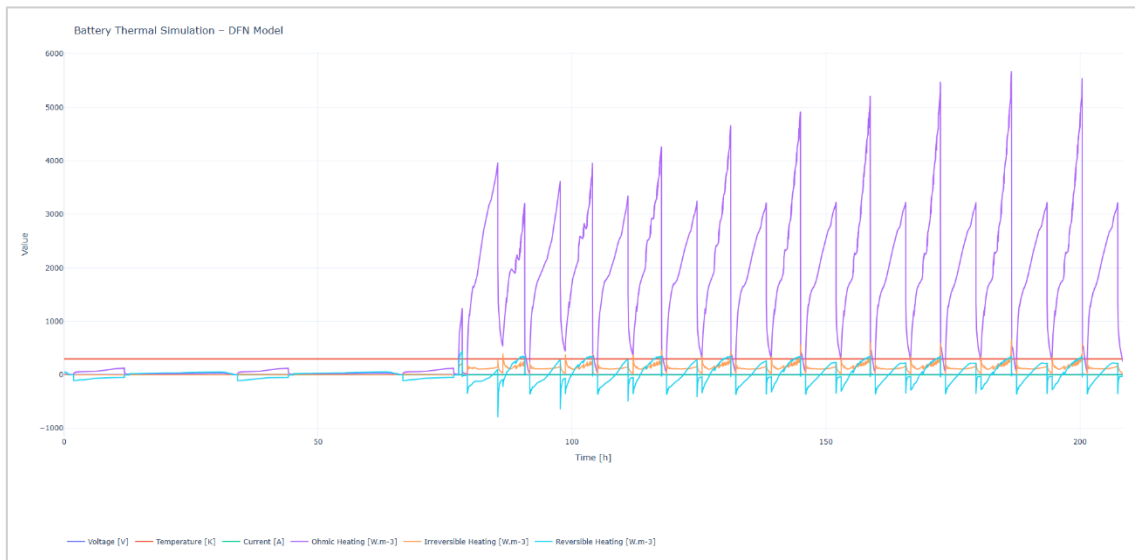


Abbildung 7: Simulierter Zellverlauf über 220 h mit Spannungs-, Temperatur- und Stromverlauf sowie differentieller Wärmezeugung (ohmsch, reversibel, irreversibel).

Abbildung 8 illustriert die ohmsche Heizleistung über die Zeit. Die ohmsche Verlustleistung steigt insbesondere ab Zyklus 80 signifikant an und zeigt wellenartige Maxima mit Spitzenwerten über 5.000 W/m^3 . Diese Entwicklung geht einher mit dem wachsenden Innenwiderstand der Zelle und bestätigt die oben genannten Polarisierungseffekte.

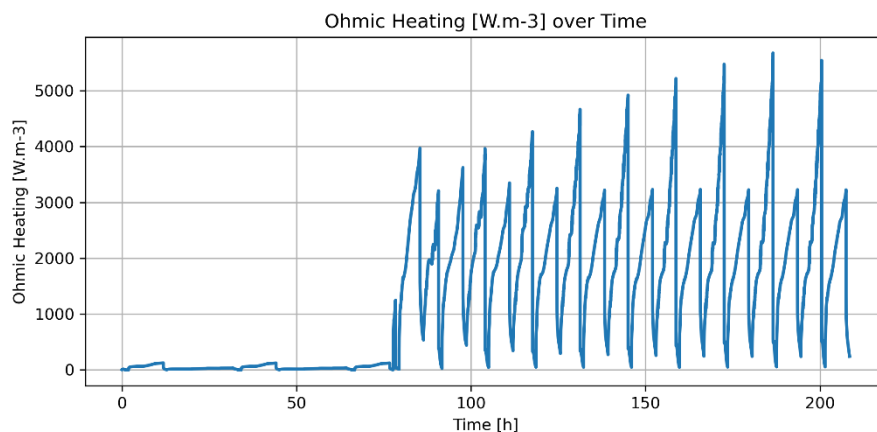


Abbildung 8: Ohmsche Heizleistung über die Zeit, ausgeprägter Anstieg ab ca. 80 h als Folge zunehmenden Innenwiderstands

Die orts aufgelöste Visualisierung in Abbildung 9 stellt die Verteilung der Temperatur, Elektrolytkonzentration, SEI-Dicke und ohmschen Heizleistung über die Zelllängsachse dar. Besonders auffällig sind die beiden Hotspots im Bereich 0,3 und 0,65 der Zelllänge, an denen die ohmsche Heizrate signifikant erhöht ist. Diese lokalen Überhitzungen korrelieren mit einer inhomogenen Elektrolytkonzentration und könnten langfristig zu beschleunigter Degradation in diesen Bereichen führen.

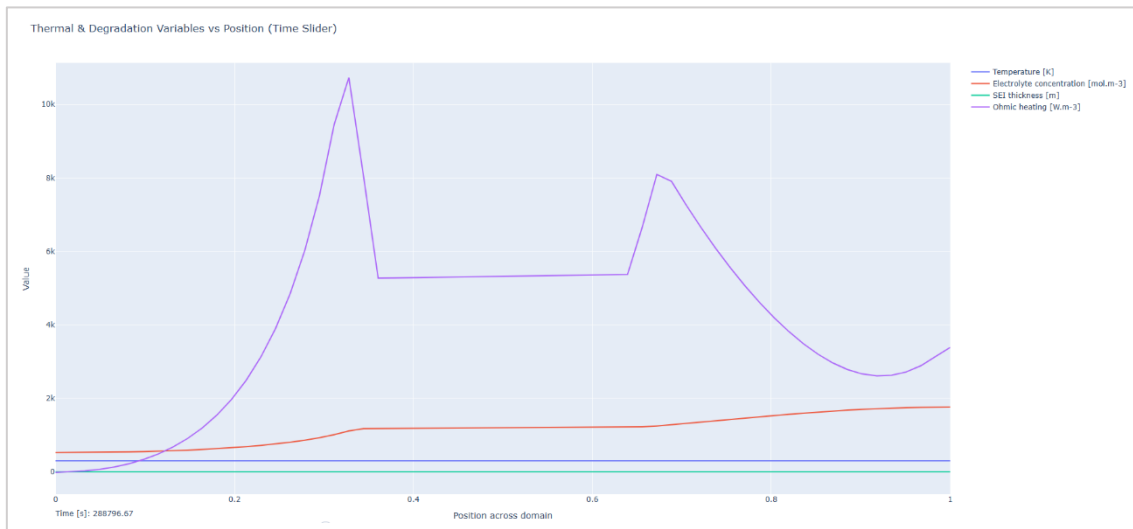


Abbildung 9: Ortsaufgelöste Verteilung thermischer und chemischer Zellgrößen zum Zeitpunkt $t = 288796$ s mit Hotspot-Bildung in kritischen Zellbereichen.

Zusammenfassend lässt sich festhalten, dass die eingesetzten Modelle eine realitätsnahe Beschreibung des thermisch-elektrochemischen Zellverhaltens über einen Alterungszeitraum hinweg erlauben. Die Ergebnisse verdeutlichen, dass insbesondere die ohmsche Erwärmung mit zunehmender Zyklierung einen dominierenden Beitrag zur Temperaturentwicklung liefert. Die modellgestützte Analyse liefert damit wichtige Erkenntnisse für die Zellüberwachung und Kühlstrategie im Langzeitbetrieb.

AP 6.5 – Abgleich mit den Zielen: Ziel war die Charakterisierung des Kapazitätsverlustes und des Innenwiderstandes über ~ 500 Zyklen sowie die Erstellung eines thermisch aufgelösten Batterieprofils. Aufgrund der eingeschränkten Lebensdauer der experimentellen Zellen wurde das Ziel experimentell nur in Ansätzen erreicht. Stattdessen konnte das thermische und elektrochemische Verhalten erfolgreich durch gekoppelte Simulationen (siehe AP 6.7) erfasst werden. Die wesentlichen Zielgrößen wurden auf Basis dieser Methodik analysiert, wodurch die intendierte Ergebnisqualität weitgehend erzielt wurde.

AP 6.6: Optimierungen der neuartigen Batteriezellen bspw. durch Anpassung der Zellverspannung

Im Fokus dieses Arbeitspakets stand die finale Optimierung des Halbschalen-Zellaufbaus, insbesondere im Hinblick auf die mechanische Stabilität, Dichtigkeit und Reproduzierbarkeit während der Formierung und den ersten Ladezyklen. Aufbauend auf den Erkenntnissen und prototypischen Entwicklungen des Jahres 2023 wurden im Berichtsjahr 2024 gezielte Konstruktionsanpassungen umgesetzt, um die Zellverspannung, Elektrolytverteilung und Gasmanagement signifikant zu verbessern.

Zellverspannung und Pressrahmenoptimierung: Ein zentrales Problem der ersten Zellgenerationen war der Verlust des Anpressdrucks während der Formierung, bedingt durch gasinduzierte Volumenzunahmen. Um dem entgegenzuwirken, wurde ein optimierter mechanischer Verspannrahmen entwickelt, der die Zelle während des gesamten Aushärtungs- und Formierprozesses mit definierter Kraft zusammenhält. Diese kontrollierte Verspannung

verhindert das Aufweiten der Halbschalen bei Gasentwicklung und stellt sicher, dass der mechanische und elektrische Kontakt über die gesamte Zellfläche erhalten bleibt. **Integration eines Gasreservoirs zur Druckentlastung:** Flankierend zur mechanischen Verspannung wurde das Zellgehäuse so modifiziert, dass ein gezielter Hohlraum oberhalb der Elektroden als Gasreservoir dient. Dieses Design erlaubt die kontrollierte Aufnahme der bei der Formierung entstehenden Gase, ohne dass diese den Zellstapel mechanisch destabilisieren. Damit konnte einer der zentralen Fehlermechanismen – der kontaktbedingte Kapazitätsverlust – erfolgreich unterdrückt werden. **Getrennte Elektrolytbefüllung zur Minimierung von Undichtigkeiten:** Ein weiteres Optimierungsziel war die Reduktion von Elektrolytverlusten durch die Verklebung. Die Implementierung einer nachträglichen Elektrolytbefüllung mittels Injektionsöffnung ermöglichte eine trockene Assemblierung der Zelle und schützt so die empfindlichen Klebestellen vor vorzeitigem Kontakt mit dem Elektrolyten. Die Kombination aus Inert-Atmosphäre, kontrollierter Dosierung und separater Aushärtung führte zu einem reproduzierbaren Elektrolytfüllgrad mit nur noch <1,5 % Masseverlust über mehrere Wochen Lagerung. **Verbesserte Klebetechnologie und Isolationskonzept:** Das finale Design verzichtet vollständig auf einen herausragenden Separator zur elektrischen Isolation. Stattdessen fungiert die Klebeschicht nun selbst als Isolator und gleichzeitig als strukturelle Verbindung der beiden Halbschalen. Durch eine gezielte Vergrößerung der Klebeflächen und die Auswahl eines elektrolytresistenten Zwei-Komponenten-Klebers konnte die Haftung verbessert und Leckagen unterbunden werden.

AP 6.6 – Abgleich mit den Zielen: Das Ziel bestand in der Optimierung des Zellaufbaus, insbesondere hinsichtlich Dichtigkeit, Versiegelung und Gasmanagement. Diese Zielsetzung wurde vollständig erreicht: Es wurden konkrete konstruktive Verbesserungen umgesetzt (Gasreservoir, nachträgliche Elektrolytbefüllung, überarbeitete Klebung), die nachweislich zu einer Reduktion des Elektrolytverlusts führten. Damit wurden die experimentellen Voraussetzungen für eine verbesserte Formierung und Zellstabilität geschaffen und das Arbeitspaket erfolgreich abgeschlossen.

AP 6.7: Auswahl und Implementierung einer Simulationsmethodik zur Untersuchung des thermischen Verhaltens der Batteriezelle

Ziel dieses Arbeitspakets war die Entwicklung eines simulationsgestützten Ansatzes zur Analyse der temperaturabhängigen Leistungsparameter neuartiger Halbschalenzellen mit ultradicken Elektroden. Aufbauend auf den elektrochemischen Modellen aus AP 6.3 und den Zellstrukturparametern aus AP 6.6 wurde ein thermisch gekoppeltes 1D-Modell mit radialer Erweiterung in der Open-Source-Simulationsumgebung PyBaMM umgesetzt. Dieses Modell sollte es ermöglichen, die lokale Temperaturverteilung, Wärmequellen und mögliche Hotspots während des Zellbetriebs orts- und zeitaufgelöst zu untersuchen.

Modellaufbau und Designentscheidungen: Die Modellierung basiert auf dem Doyle-Fuller-Newman-Modell (DFN), welches um thermische Submodelle erweitert wurde. Für die Untersuchung der Wärmedynamik wurden folgende Aspekte berücksichtigt:

- Kopplung von elektrochemischen und thermischen Submodellen: Es wurde das integrierte thermal-Modul von PyBaMM genutzt und auf die spezifischen Parameter der Halbschalenzelle angepasst. Berücksichtigt wurden ohmsche Verluste, irreversible Wärmeentwicklung durch SEI-Wachstum sowie reversible Wärmeflüsse aus Entropieeffekten.

- **Modellspezifische Geometrieangepassung:** Die thermische Simulation wurde für eine Zelle mit einer 3 mm dicken Elektrode und vereinfachter radialsymmetrischer Struktur entworfen, um die spezifische Wärmeableitung in dicken Zellschichten zu erfassen. Die Modellgeometrie basiert auf den in Kapitel 6.6 beschriebenen optimierten Zellabmessungen.
- **Randbedingungen und Materialparameter:** Die verwendeten thermischen Leitfähigkeiten, Wärmekapazitäten und Dichten wurden in Anlehnung an Literaturwerte sowie bekannte Parameter für Aluminiumgehäuse, Separatoren und NMC-Elektroden festgelegt.
- **Temperaturabhängige Materialeigenschaften:** Die Modelle wurden erweitert, um temperaturabhängige Reaktionsraten, Diffusionskoeffizienten und Leitfähigkeiten zu berücksichtigen.

Die Ergebnisse der Simulationen zeigen eine signifikante lokale Wärmeerzeugung insbesondere im Bereich der positiven Elektrode sowie an der Phasengrenze zum Separator. Diese Erkenntnisse sind konsistent mit den in Kapitel 6.5 dargestellten Hotspot-Regionen, die bereits visuell in Form von Temperaturverteilungen, lokaler Heizleistung und thermisch induzierter Entkopplung dargestellt wurden. Die Simulationen bestätigen, dass eine nichtoptimale Wärmeabfuhr durch unzureichenden Anpressdruck oder unvollständige Zellbenetzung zu lokal überhöhten Temperaturen führen kann, die wiederum die SEI-Bildung und Zellalterung beschleunigen. Ein Vergleich von formierten und unformierten Zellen zeigte zudem eine Konvergenz im SEI-Verhalten, was auf eine korrekte Parametrierung und Modellstabilität hinweist. Die Kapazitätsverluste im Verlauf von 100 Zyklen konnten klar differenziert werden in reversible und irreversible Komponenten. Insbesondere zeigte sich, dass das irreversible Lithium-Plating, nicht das SEI-Wachstum, den dominierenden Alterungsmechanismus bei hohen C-Raten darstellt. Damit erlaubt die entwickelte Methodik eine belastbare Simulation des thermischen Zellverhaltens bei gleichzeitigem SEI-Wachstum in dicken Elektroden. Sie trägt dazu bei, kritische Betriebsparameter frühzeitig zu identifizieren und ermöglicht eine gezielte Optimierung von Formierprotokollen hinsichtlich thermischer Belastung.

AP 6.7 – Abgleich mit den Zielen: Ziel war die Auswahl und Implementierung einer geeigneten Simulationsmethodik zur Untersuchung des thermischen Verhaltens. Diese Zielsetzung wurde vollumfänglich erfüllt. Basierend auf dem DFN-Modell in PyBaMM wurde ein thermisch gekoppeltes Simulationsmodell erstellt, welches bereits im Rahmen von AP 6.5 für die Visualisierung lokaler Hotspots eingesetzt wurde.

2. Zahlenmäßiger Nachweis

Die im Rahmen des Vorhabens „ULTRABATT“ (FKZ: 16BZF356C) entstandenen Kosten beliefen sich bis einschließlich 2025 auf insgesamt **190.197,30 €**, was knapp unter der ursprünglich kalkulierten Gesamtsumme von **194.055,00 €** liegt. Die Abweichung ist vor allem auf nicht in Anspruch genommene Mittel bei Sach- und Reisekosten zurückzuführen.

Ein Überblick über die Hauptpositionen:

- **Position 0837 – Personalkosten:** Mit **164.409,24 €** bilden die Personalkosten den größten Anteil. Sie lagen leicht über der ursprünglichen Kalkulation (**154.293,00 €**). Grund war ein höherer zeitlicher Aufwand für die Implementierung und Validierung der Simulationsmodelle (AP 6.2, 6.3 und 6.7), der in der ursprünglichen Planung nicht in vollem Umfang absehbar war.
- **Position 0847 – Investitionen (AfA):** Für vorhabensspezifische Anlagen wurden **22.145,37 €** verbucht (Plan: **24.985,00 €**). Diese wurden im Wesentlichen für die Anschaffung und Integration des neuen Zellausbauelements- und Testequipments (AP 6.6) verwendet.
- **Position 0813 – Materialkosten:** Mit **3.385,96 €** wurden Materialien nur zu einem kleinen Teil des geplanten Budgets (**4.500,00 €**) in Anspruch genommen. Der reduzierte Bedarf resultierte aus der Entscheidung, keine weiteren experimentellen Zellreihen aufzubauen, sondern auf simulationsbasierte Ansätze auszuweichen.
- **Position 0850 – Sonstige unmittelbare Vorhabenskosten:** Diese Position enthält u. a. Ausgaben für Softwarelizenzen, Verbrauchsmittel und Datenmanagement. Die entstandenen Kosten beliefen sich auf **256,73 €**, deutlich unterhalb der geplanten **5.597,00 €**. Der Großteil der verwendeten Software (v. a. PyBaMM) war quelloffen, sodass keine kommerziellen Lizenzkosten anfielen.
- **Nicht genutzte Positionen:** Reisekosten (0838), Fremdleistungen (0823), Veröffentlichungskosten (0848) und Gemeinkosten (0856) wurden nicht in Anspruch genommen.

3. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Die Notwendigkeit der geleisteten Arbeit ergibt sich aus dem zentralen Ziel des Ultrabatt-Projekts: der Entwicklung eines neuartigen Formier- und Reifungsprozesses für Lithium-Ionen-Zellen mit ultradicken Elektroden (~3 mm) zur Generierung idealer Grenzschichten (SEI/CDL), um eine Nennkapazität von 85–90 % nach 5.000 Ladezyklen zu gewährleisten. Diese Herausforderung ist mit konventionellen Methoden nicht lösbar, da bestehende Zellkonzepte und Formierstrategien auf deutlich dünnere Elektroden ausgelegt sind. Die geleistete Arbeit war in mehrfacher Hinsicht notwendig und angemessen:

- **Wissenschaftlich-technisch:** Die gezielte Anpassung des Formierprotokolls, die Entwicklung neuer Versuchsaufbauten (Halbschalen-Design) und die simulationsgestützte Untersuchung von SEI-Wachstum und thermischem Verhalten adressieren zentrale wissenschaftliche Fragestellungen, die ohne öffentlich geförderte Vorleistungen nicht bearbeitet worden wären.

- **Innovationsgrad:** Der Aufwand war angemessen, um ein vollständig neues Zellkonzept zu realisieren, das sich durch hohe gravimetrische Energiedichte (~ 300 Wh/kg), lösungsmittelfreie Herstellung und mechanisch dichte Zellverschlüsse auszeichnet. Die Entwicklung eines gasmanagementfähigen Zellaufbaus war ohne experimentelle Validierung und iteratives Design nicht möglich.
- **Risiko und Unsicherheit:** Die erforschten Prozesse und Konzepte unterliegen hohen Unsicherheiten hinsichtlich Materialverhalten, Gasentwicklung und Temperaturverteilungen, was eine forschungsintensive und explorative Vorgehensweise erforderte. Die getroffenen Designentscheidungen mussten systematisch abgesichert und evaluiert werden, u. a. durch gekoppelte PyBaMM-Simulationen und experimentelle Messreihen.
- **Gesamtwirtschaftliche Zielstellung:** Die Entwicklung eines industriell skalierbaren, hochperformanten Zelltyps mit reduziertem Energieverbrauch beim Formieren leistet einen relevanten Beitrag zu den förderpolitischen Zielen des Programms (insbesondere Ressourcenschonung, CO₂-Reduktion, Innovationssicherung am Standort Deutschland).

Insgesamt war der durch das Fraunhofer IPA geleistete Beitrag sowohl hinsichtlich der Tiefe der wissenschaftlichen Bearbeitung als auch im Hinblick auf die strategische Positionierung im Innovationsprozess notwendig und angemessen. Alle wesentlichen Ziele des Teilvorhabens wurden bearbeitet, viele davon vollständig erreicht oder durch weiterführende simulative Grundlagen geschaffen.

4. Verwertbarkeit der Ergebnisse

Wissenschaftliche Verwertung: Die im Teilvorhaben des Fraunhofer IPA entwickelten simulativen und experimentellen Erkenntnisse zum Formier- und Reifungsprozess von Lithium-Ionen-Zellen mit ultradicken Elektroden bilden eine belastbare Grundlage für weiterführende Forschung. Aktuell entsteht auf Basis der Simulationsergebnisse im Rahmen einer Masterarbeit eine wissenschaftliche Publikation, die zur Einreichung bei einem internationalen Fachjournal vorbereitet wird. Darüber hinaus fungieren die Ergebnisse aus Ultrabatt bereits als konzeptionelle Grundlage für neue Projektideen, insbesondere im Bereich simulationsgestützter Elektrodenentwicklung und thermischer Prozessoptimierung. Sie fließen aktuell in Beantragung befindliche Projekte ein und stärken die strategische Positionierung des Fraunhofer IPA im Bereich der elektrochemischen Modellierung und Zellprozessierung.

Wirtschaftliche Verwertung: Die technischen Ergebnisse und das gewonnene Know-how werden gezielt in das Leistungsportfolio des Fraunhofer IPA integriert. So konnte das bestehende Angebot im Bereich Zellproduktion um Kompetenzen im Zellfinishing von innovativen Zellformaten mit ultradicken Elektroden erweitert werden. Parallel dazu wurde fundiertes Wissen im Bereich elektrochemischer und thermischer Batteriemodellierung aufgebaut, das künftig als Dienstleistung für Industriepartner angeboten wird, z. B. zur Bewertung neuer Zellarchitekturen oder zur virtuellen Formierprotokoll-Optimierung.

Die im Rahmen des Projekts intensivierte Vernetzung mit relevanten Akteuren der Zellentwicklung und -produktion schafft darüber hinaus die Basis für gemeinsame Technologieentwicklungen und Transfers in die industrielle Anwendung. Eine Verwertung der

Ergebnisse über neue Verbundprojekte, Pilotprojekte mit Industriepartnern sowie perspektivisch auch Schutzrechtsanmeldungen wird angestrebt.

5. Fortschritts auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Im Verlauf des Projekts wurden keine nennenswerten externen Fortschritte bekannt, die sich explizit mit der Entwicklung oder Formierung von Lithium-Ionen-Zellen mit vergleichbar dicken Elektroden oder mit ähnlichen Fertigungsansätzen und Zellarchitekturen befassen. Auch in der wissenschaftlichen Literatur und bei Fachtagungen konnten keine konkurrierenden Ansätze identifiziert werden, die das im Projekt ULTRABATT adressierte Anwendungsfeld in vergleichbarer Tiefe bearbeiten. Die im Projekt entwickelten Konzepte und simulativen Methoden zur Prozessierung, Modellierung und Zellbewertung gelten damit weiterhin als technologisch wegweisend im Kontext dicker Elektroden und neuartiger Zellformate.

6. Geplanten Veröffentlichungen des Ergebnisses

Im Rahmen des Teilvorhabens wurden bisher keine formalen wissenschaftlichen Veröffentlichungen eingereicht. Aktuell befindet sich jedoch eine Masterarbeit zur simulativen Modellierung der SEI-Bildung bei ultradicken Elektroden in Ausarbeitung. Ziel ist eine anschließende Publikation in einem wissenschaftlich begutachteten Fachjournal, voraussichtlich im Bereich elektrochemischer Modellierung oder Zellformierung. Zusätzlich ist eine Veröffentlichung der zentralen Ergebnisse des Projekts in Form eines Konferenzbeitrags in Vorbereitung, um die entwickelten Methoden und Erkenntnisse zur Formierung, Zellarchitektur und Alterungscharakterisierung einem breiteren Fachpublikum zugänglich zu machen.