

Schlussbericht im BMBF-Kompetenzcluster Intelligente Batteriezellproduktion – InZePro

Projekt InForm – Förderkennzeichen 03XP0363D

Vorhabenbezeichnung: InForm – Entwicklung intelligenter Formieranlagen zur Optimierung und Diagnose von Zelleigenschaften	
Zuwendungsempfänger: Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung Baden-Württemberg (ZSW)	Förderkennzeichen 03XP0363D
ausführende Stelle: Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung Baden-Württemberg (ZSW) Fachgebiet Produktionsforschung	Adresse Lise-Meitner-Str. 24 89081 Ulm
Projektleiter Dr. Wolfgang Braunwarth Markus Blessing	Berichtszeitraum 01.03.2021 - 31.08.2024

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Forschung unter dem Förderkennzeichen [03XP0363D] gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der Autorin/beim Autor.

Ulm
Ort

24.02.2025
Datum

I. Teil I - Kurzbericht

Aufgabenstellung

Die Zellaktivierung und -qualifizierung sind die letzten entscheidenden Produktionsschritte, welche maßgeblich über die spätere Leistung, Sicherheit und Langlebigkeit einer Batteriezelle entscheiden. Der sogenannte Formierungsprozess ist zugleich auch einer der zeit- und damit kostenintensivsten Verfahrensschritte in der gesamten Herstellungskette. In der Serienproduktion ist eine Prozessdauer inklusive der abschließenden Qualitätskontrolle (End-of-Line-Test) bis hin zu mehreren Tagen dabei nicht unüblich, was entsprechend hohe Kosten und Kapitalbindung in der Produktion verursacht.

Im Projekt InForm soll als übergeordnetes Projektziel durch Entwicklung und Implementierung einer intelligenten Formierungsstrategie und Digitalisierung eine Beschleunigung der Zellaktivierung bei gleichzeitiger Senkung der Prozesskosten erreicht werden. Zusätzlich soll durch die frühzeitige Charakterisierung der Zelleigenschaften und der Prävention von Schädigungsmechanismen die Zellqualität und Lebensdauer gesteigert, sowie Ausschuss minimiert werden.

Planung und Ablauf des Vorhabens

Zu Beginn des Projektes wurden am ZSW in Ulm entsprechend der im InZePro-Cluster festgelegten Materialien und Anforderungen Referenzelektroden ausgelegt, produziert und nach einer erfolgreichen, umfassenden Analyse an die Partnerinstitute verteilt.

Für eine valide Aussagekraft wurden somit institutsübergreifend für sämtliche Zellbauaktivitäten identische Elektrodenmaterialien verwendet. Am ZSW in Ulm wurde als Referenzzellen großformatige prismatische Hardcasezellen im PHEV1-Format assembliert, welche für die Definition eines Referenzdatensatzes formiert und vielseitig charakterisiert wurden.

Ausgehend von der Referenzformierung wurden im Projektverlauf beschleunigte Formierstrategien erprobt und deren Auswirkungen auf die Zellqualität und Degradationsverläufe validiert. Für die Realisierung eines live-Eingriffs auf die Prozessparameter während der Formierung wurde Schnittstelle definiert, welche eine kontinuierliche Rückmeldung der realen Messgrößen bereitstellt sowie eine externe Eingabe bzw. Änderung von ausgewählten Eingangsparametern in definierten Bereichen ermöglicht. Mit Hilfe der geschaffenen Schnittstelle wurden das Potential einer möglichen Prozessbeschleunigung validiert. Begleitend durchliefen die getesteten Zellen diversen Qualitätskontrollen und Offline-Analysen wie CT-Messungen, Erfassung und Analyse der entstehenden Formiergase, Zellrückbau mit Post-Mortem-Analysen, Langzeitzyklisierungen sowie Einflussuntersuchungen von Druck und mechanischen Belastungsgrößen. Ebenfalls wurde eine formatspezifische Übertragbarkeit der erlangten Erkenntnisse auf großformatige Pouchzellen geprüft, um einen möglichst großen Mehrwert für eine möglichst vielseitige, industrielle Anwendung zu schaffen.

Erzielte Ergebnisse

Im Projekt InForm wurden hochqualitative Elektroden produziert, an die Partnerinstitute versandt und zu reproduzierbaren großformatigen Batteriezellen assembliert. Nach erfolgreicher Erstellung eines Benchmarking-Datensatzes anhand der Referenzformierung konnten durch die Realisierung einer definierten Schnittstellenerweiterung, unter Berücksichtigung der Sicherheit, Prozessgrößen intelligent und zellindividuell angepasst werden, wodurch eine erhebliche Reduktion der Formierdauer erzielt werden konnte, ohne dabei die Zellqualität negativ zu beeinflussen. Als weiterer Benefit können charakteristische Zelleigenschaften frühzeitig erkannt und entsprechende Prozessregelungen auf Zellebene aktiv gesteuert werden, wodurch die Streubreite hinsichtlich der Zellqualität positiv beeinflusst und die Lebensdauer der Zellen optimiert werden konnte.

Des Weiteren wurde eine alternative Formierstrategie durch periodische Strompulse erprobt und deren positiven Einfluss auf eine Prozesszeitverkürzung bei großformatigen Hardcase-Zellen (PHEV1) dargelegt. Da im Projektumfang ebenfalls eine Übertragbarkeit der beschleunigten Formierung auf großformatige Pouchzellen erfolgreich nachgewiesen wurde, bietet sich auch für die industrielle Anwendung ein immenses Potential für eine effiziente Zellaktivierung.

Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Während der gesamten Projektlaufzeit fanden regelmäßige Treffen und Workshops mit den Projektpartnern statt, um Fortschritte und Fragestellungen abzugleichen sowie Arbeitsinhalte zu konzipieren. Eine besonders tiefgehende Abstimmung erfolgte mit dem Partnerinstitut HIU/KIT sowie dem Maschinenbauerhersteller thyssenkrupp Automation Engineering GmbH zur Planung und Realisierung einer definierten Datenschnittstelle für den intelligenten live-Eingriff auf die Formierprozesse. Des Weiteren erfolgte fortlaufend ein reger und positiver Austausch mit diversen OEMs und Anlagenherstellern rund ums Thema Formierung und der dazugehörigen Infrastruktur.

Zusammen mit dem HIU/KIT (bzw. später TUM) wurde zudem eine Veröffentlichung über die Ergebnisse hinsichtlich beschleunigter Formierprozeduren im Projekt InForm publiziert.

II. Teil II – Wissenschaftliche technische Ergebnisse

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

Als übergeordnetes Projektziel soll durch Implementierung von KI und Digitalisierung eine Beschleunigung der Zellaktivierung bei gleichzeitiger Prozesskostensenkung erreicht werden. Zusätzlich soll durch die frühzeitige Charakterisierung der Zelleigenschaften und der Prävention von Schädigungsmechanismen die Zellqualität gesteigert sowie Ausschuss minimiert werden. Zur Erreichung des Projektziels wurden Arbeitspakete definiert, welche entsprechend der Teilvorhaben durch die jeweiligen Projektpartner bearbeitet wurden.

Im folgenden Bericht ist ein Auszug der wichtigsten Ergebnisse und Erkenntnissen durch die Tätigkeiten des ZSW ausgeführt. In Abbildung 1 ist der Zeitplan des Projekts InForm über die gesamte Laufzeit mit den für das ZSW relevanten Arbeitspaketen und den Projektmeilensteinen dargestellt.

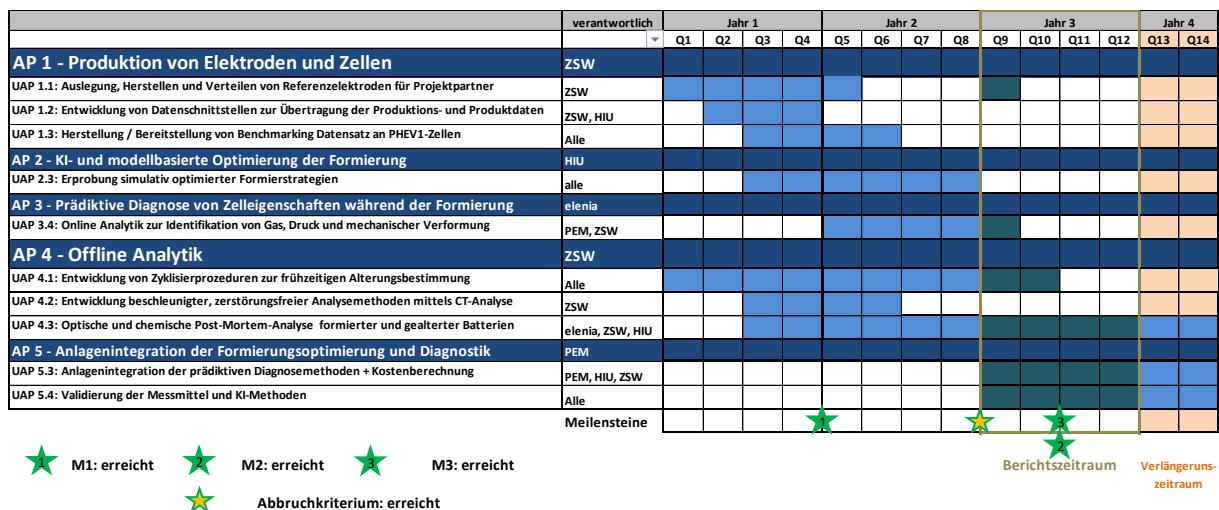


Abbildung 1: Übersicht der Gesamtlaufzeit im Projekt InForm mit Einteilung der Arbeitspakete AP1 und AP4 sowie der Unterarbeitspakete mit ZSW-Beteiligung

a) AP1: Produktion von Elektroden & Zellen (ZSW)

Entsprechend der im InZePro-Cluster festgelegten Materialien und Anforderungen wurden für das Projekt InForm in **UAP 1.1** Referenzelektroden ausgelegt, produziert und in einer umfassenden Analyse validiert. Aufgrund der sensiblen Degradationscharakteristik während der Lagerung von Elektrodenmaterial wurden mit den Projektpartnern insgesamt drei Elektrodenproduktionsbatches verteilt auf die Gesamtlaufzeit vereinbart. Während des Beschichtens der jeweiligen Anoden- und Kathodenslurrys auf die jeweiligen Kollektorfolien konnte bei sämtlichen Produktionsbatches ein homogenes Flächengewicht über die gesamte Beschichtungslänge nachgewiesen werden, was für eine nötige Reproduzierbarkeit in der späteren Zellherstellung von essentieller Wichtigkeit ist. Nach dem Kalandrieren

auf die Zieldichte und –dicke wurde die Beschichtungs- und Elektrodenqualität umfassend auf morphologische und elektrochemische Eigenschaften analysiert.

In Abbildung 2 sind REM-Aufnahmen der Vergrößerten Partikel der Anoden- und Kathodenoberfläche sowie Kathodenquerschnitte zur Identifikation der elementaren Bestandteile durch EDX-Mapping dargestellt. Dabei ist sowohl für das Aktivmaterial (Ni,Mn,Co) als auch für das zur verbesserten Leitfähigkeit beigefügte Leitgraphit und Rußadditiv (C) und den fluorhaltigen PVdF-Binder (F) eine homogene Verteilung über den gesamten Querschnitt, bis hin zur Kollektorfolie, erkennbar. Zusätzlich konnten durch die REM/EDX-Analyse potentielle Materialverunreinigungen oder sonstige parasitäre Elemente ausgeschlossen werden.

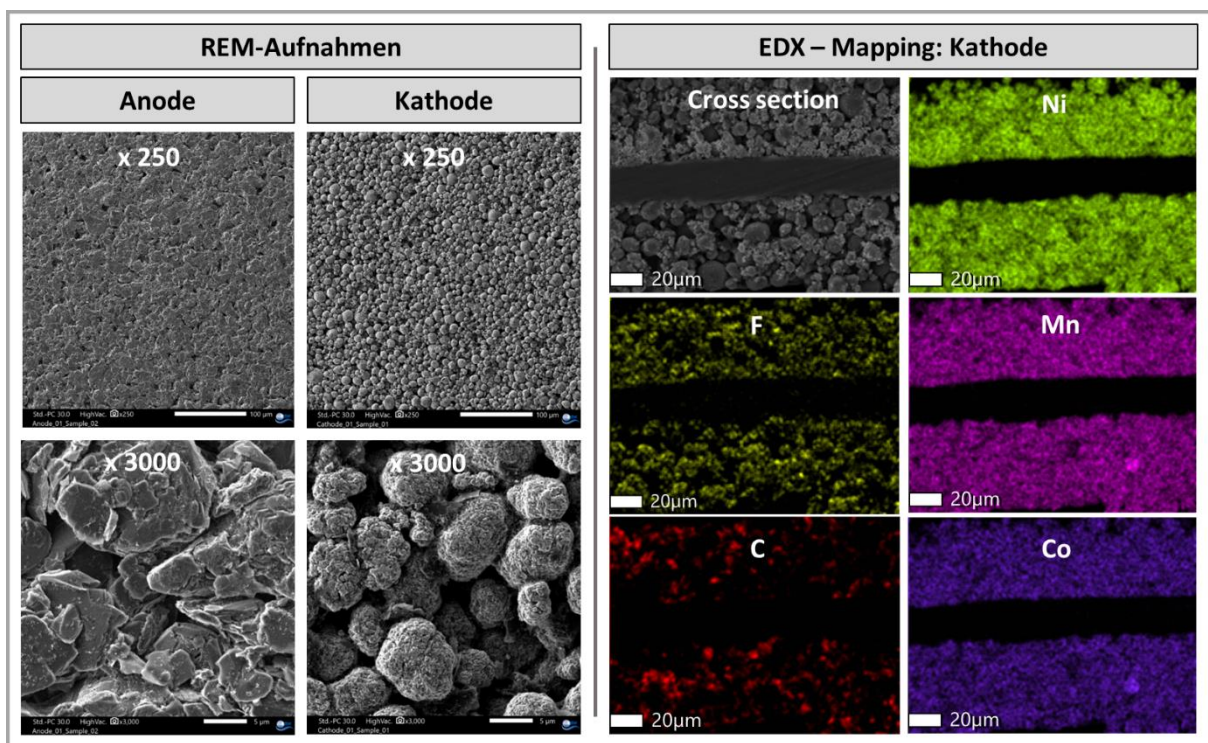
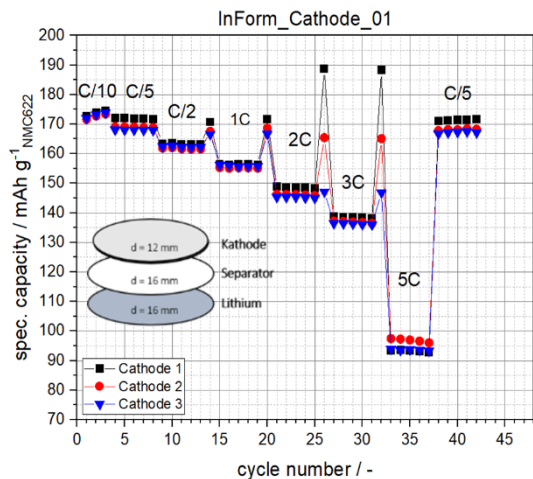


Abbildung 2: REM-Aufnahmen zur optischen Analyse der Partikel für Anode und Kathode sowie EDX-Mapping zur Darstellung der Partikelverteilung einzelner Bestandteile am Beispiel der produzierten Kathode

Mit der Herstellung von knopfförmigen Halbzellen wurden die elektrochemischen Eigenschaften getrennt für beide Elektroden bestimmt. Dabei wurden jeweils drei einseitig beschichtete, münzförmige Anoden- und Kathodenstanzlinge gegen Lithium-Referenzelektroden gemessen, um die elektrodenspezifischen Leistungsdaten zu erfassen. Abbildung 3 zeigt die massenspezifischen Entladekapazitäten bezogen auf die Aktivmaterialien der jeweiligen Elektroden bei unterschiedlichen C-Raten am Beispiel der produzierten Kathoden-Halbzellen. Für sämtliche Ladevorgänge wurde ein einheitlicher Ladestrom von C/5 gewählt. Kathodenseitig wurde über einen Spannungsbereich zwischen 4,3 V und 3,0 V prozessiert. Für die Anoden-Halbzellen wurde ein adäquates Vorgehen angewandt, wobei das Spannungsfenster aufgrund des geringen Anodenpotentials vs. Li/Li⁺ zwischen 1,5 V und 0,01 V gewählt wurde.



Eigenschaft	Einheit	Anode	Kathode
Aktivmaterial		SMG-A5	NMC 622
Dicke kalandriert (mit Folie)	µm	133	117
Dichte kalandriert	g/cm ²	1,40	3,0
Flächengewicht (einseitig)	mg/cm ²	8,6	14,6
Porosität	%	39	33,5
Flächenkapazität (@0,1C)	mAh/cm ²	2,80 ± 0,002	2,40 ± 0,01
Flächenkapazität (@1C)	mAh/cm ²	2,65 ± 0,04	2,16 ± 0,01
Massenkapazität (@0,1C)	mAh/g _{AM}	343,46 ± 0,19	173,13 ± 0,95
Massenkapazität (@1C)	mAh/g _{AM}	324,36 ± 5,15	155,77 ± 0,47
Abzugskraft	N/mm ²	0,64 ± 0,04	2,32 ± 0,17

Abbildung 3: Spezifische Entladekapazitäten in Abhängigkeit unterschiedlicher C-Raten von Kathoden-Halbzellen und Ergebnis-tabelle der Elektrodencharakterisierung für Anode und Kathode

Eine Auswahl von relevanten, charakterisierten Elektroden-eigenschaften sind in Abbildung 3 tabellarisch aufgelistet. Die Darstellung von spezifischen Kapazitäten dient für einen skalierbaren Vergleich zwischen den unterschiedlichen Zellformaten der weiteren Projektpartner.

Für die Herstellung der zweiten und dritten Elektrodenbatches wurde ausgehend von Forschungserkenntnissen aus dem Förderprojekt MiKal und nach Absprache mit dem Managementkreis des InZePro-Clusters eine Anpassung der Anodenrezeptur vorgenommen. Durch die Anpassung der Rezeptur konnte der Aktivmaterialanteil von 94 gew.-% auf 95 gew.-% erhöht werden, wodurch die elektrochemische Anodenperformance verbessern werden konnte. Abbildung 4 a) illustriert die durch die Rezepturanpassung gesteigerte massenspezifische Kapazität des Anodenaktivmaterials bei verschiedenen C-Raten. Abbildung 4 b) zeigt die konstante Homogenität der kalandrierten Anodendicke über die gesamte Elektroden-geometrie. Durch die Rezepturanpassung konnte zudem eine höhere Partikelverdichtung beim Kalandrieren erzielt werden. Dadurch konnte bei gleichbleibendem Flächengewicht auf eine geringere Zieldicke verdichtet werden, ohne die Anodenstruktur negativ zu beeinflussen. Anhand eines dünneren Elektroden-design kann der Energieinhalt von Batteriezellen signifikant verbessert werden.

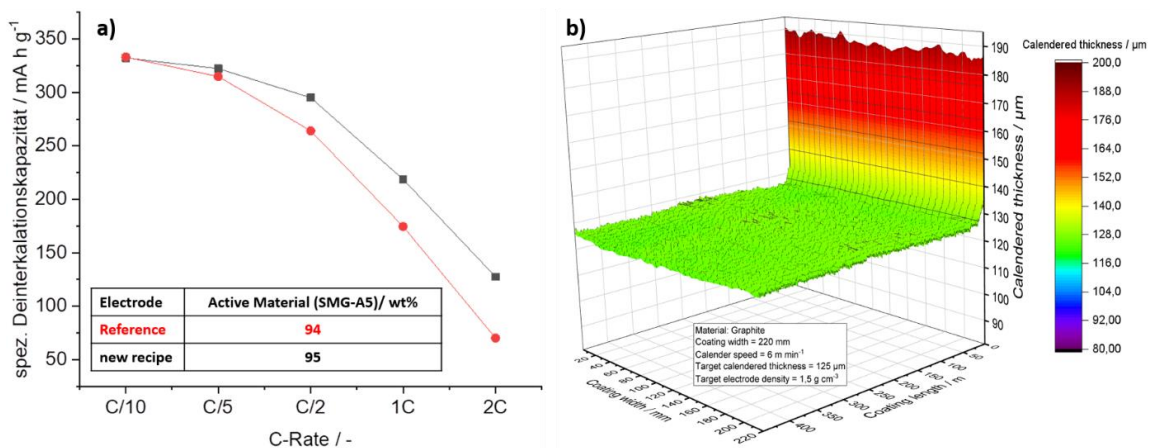


Abbildung 4: a) Vergleich der massenspezifischen Entladekapazität von zwei unterschiedlichen Anodenrezepturen bei unterschiedlichen Entladestromstärken; b) Darstellung der Homogenität der kalandrierten Anodendicke

In **UAP 1.2** wurde gemeinsam mit dem HIU und dem Anlagenhersteller thyssenkrupp Automation Engineering eine Datenschnittstelle definiert, mit welcher die wesentlichen Prozessdaten kontinuierlich extern gelesen und definierte Eingabegrößen während des aktiven Prozess variiert werden können. Hierfür wurde eine Softwarearchitektur gewählt, in welcher über einen sicheren VPN-Klient auf die seitens thyssenkrupp entwickelte API (Application Programming Interface) zugegriffen werden kann. Über den REST-Webserver wird dabei der Zugang auf sämtliche Anlagenzustände, Prozessdaten sowie die Rezepturverwaltung ermöglicht. Somit konnte basierend auf dieser Datenschnittstelle ein live-Zugriff einer intelligenten Steuerung realisiert werden. Zur Datenkommunikation wurden in diesem UAP maschinenlesbare Tabellenformate wie CSV und JSON festgelegt. In Abbildung 4 ist das prinzipielle Konzept der Datenschnittstelle zwischen dem HIU bzw. der intelligenten Steuerung und der Formierungsanlage am ZSW gezeigt.

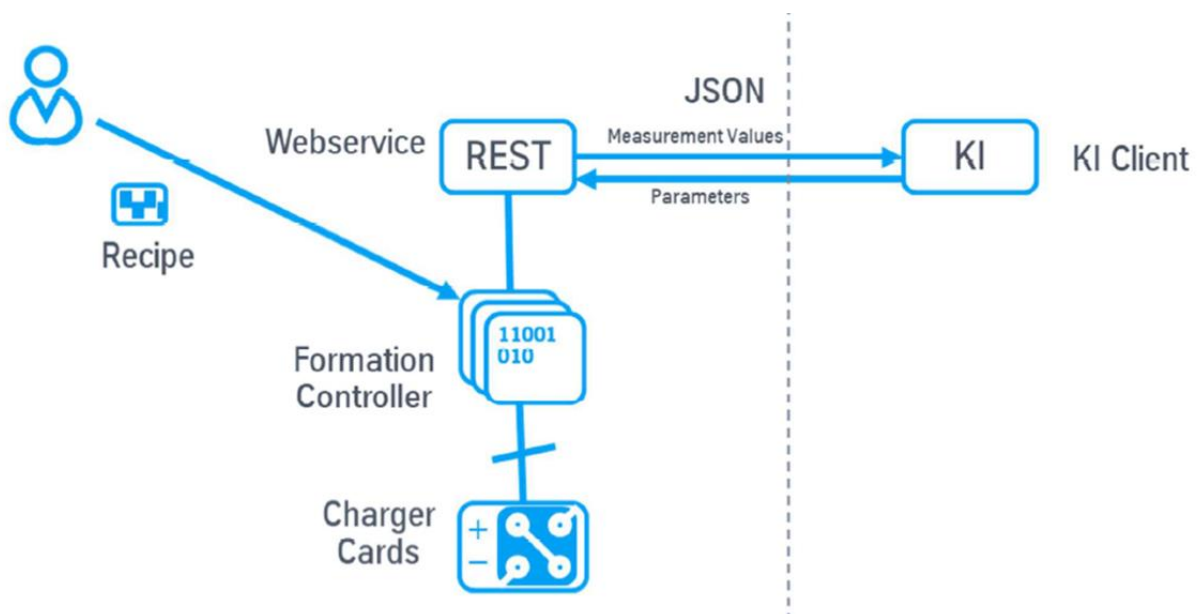


Abbildung 5: Konzept der Schnittstelle zur Bereitstellung der Prozessdaten und Implementierung der intelligenten Steuerung

Aus den in UAP 1.1 produzierten Referenzelektroden wurden im Rahmen von **UAP 1.3** prismatische Hardcase-Zellen im PHEV1-Format assembliert, mit welchen der Benchmarking-Datensatz der festgelegten Referenzformierung als Bemessungsgrundlage für die weiteren Projektfortschritte generiert und publiziert wurde. Die projektspezifischen Prozeduren und Ergebnisse der Referenzformierung werden im Unterkapitel UAP 2.3 detailliert beschrieben. Für die nötige Reproduzierbarkeit wurden sämtliche Zellen mit einer übereinstimmenden Komponentenauswahl und –dimensionierung gefertigt und mit einer einheitlichen Elektrolytmenge befüllt. In Abbildung 6 sind die Eingangskomponenten und die einzelnen Prozessschritte für die Herstellung von PHEV1-Zellen dargestellt sowie eine Auswahl relevanter Prozessparameter der Zellemblierung aufgelistet.

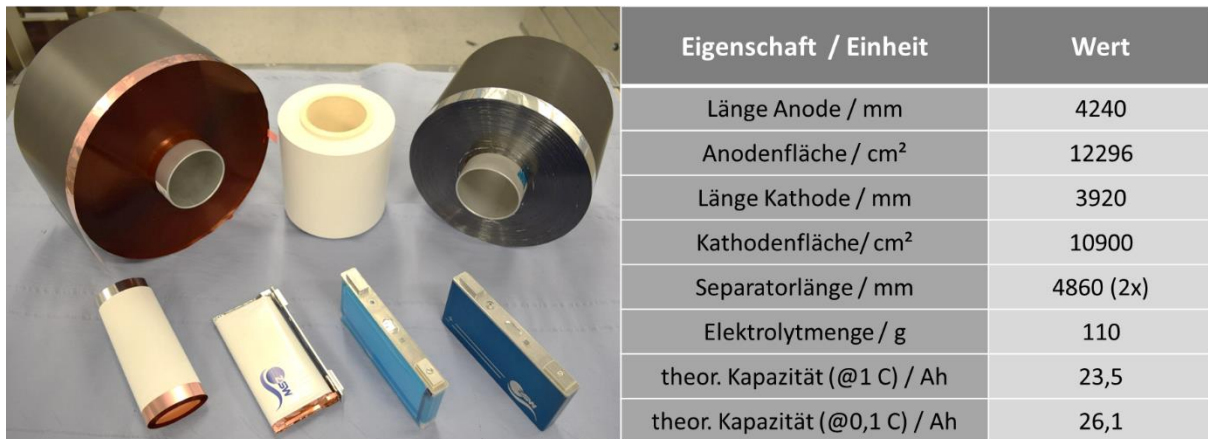


Abbildung 6: Anoden-, Kathoden-Separatorcoils als Eingangskomponenten zur Herstellung von PHEV1-Hardcase-Zellen mit einzelnen Produktionsschritten und Auflistung relevanter Prozessparameter der Zellausfertigung

Der Befüllprozess wurde entsprechend der Benetzbarkeit des polyolefinen Separatortyps Celgard 2325 gewählt und optimiert, während die Elektrolytmenge entsprechend der Volumina und Porositäten von Anode, Kathode und Separator ermittelt wurde. Mit der Entwicklung des Impedanzverlaufs konnte der Benetzungsfortschritt der Materialstrukturen im Anschluss der Befüllung visualisiert werden. Aus Abbildung 7 kann der schematische Ablauf des Befüllprozesses eingesehen werden. Zusätzlich ist die Entwicklung der Zellimpedanz und des zusammenhängenden Innenwiderstands der Zelle nach der Befüllung dargestellt. Es konnte gezeigt werden, dass die Benetzung der Zellkomponenten hauptsächlich in den ersten 90 Minuten nach der Befüllung abläuft und nach etwa 3-4 Stunden im Wesentlichen abgeschlossen ist.

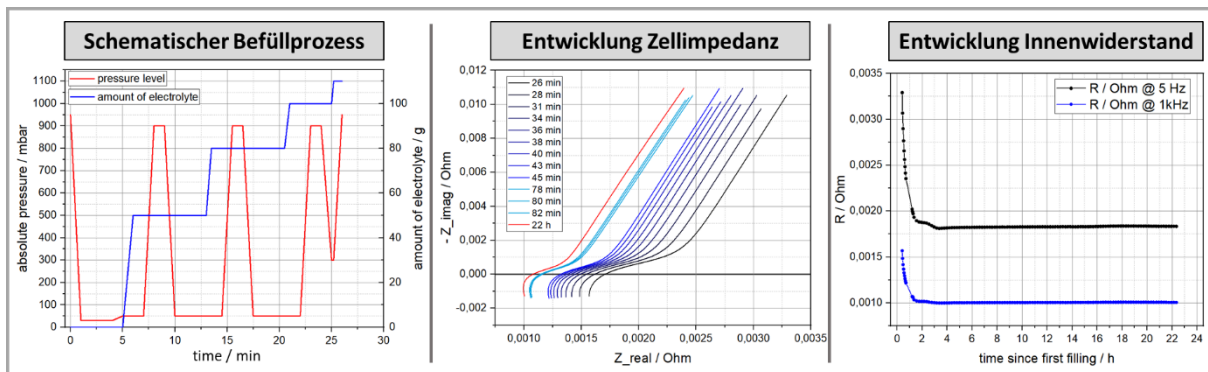


Abbildung 7: Schematische Darstellung des Befüllprozesses der assemblierten PHEV1-Zellen mit polyolefinen Separator Celgard 2325 und Verlauf der Zellimpedanz und Innenwiderstand zur Visualisierung des Benetzungsfortschritts

Eine vollständig abgeschlossene Benetzung der Separator- und Elektrodenporenstruktur ist zwingend notwendig, um Schädigungsmechanismen durch inhomogene Stromdichten während der Formierung zu vermeiden.

Um die formatspezifischen Einflüsse bzw. die Übertragbarkeit der bereits erarbeiteten Ergebnisse auf diverse Zellformate zu erproben, wurden auf der Forschungsproduktionslinie (FPL) am ZSW mit den hergestellten Elektroden des ersten Produktionslaufs großformatige Pouchzellen mit gestapelten Einzelblättern assembliert und entsprechend der Referenzformierung aktiviert.

Mit der Erstellung, Validierung und dem Versand der Referenzelektroden, der Definition einer intelligenten Datenschnittstelle und der Herstellung des Benchmarking-Datensatzes der Referenzformierung mittels assemblierten, großformatigen Zellen wurden alle geplanten Tätigkeiten im Arbeitspaket 1 erfolgreich abgearbeitet.

b) AP2: UAP 2.3 Erprobung simulativ optimierter Formierstrategien

Zur Definition einer geeigneten Rezeptur für die Benchmarking-Formierung wurden neben der projektübergreifenden InZePro-Formierung drei weitere Formierstrategien erprobt, welche hinsichtlich der elektrochemischen Zelleigenschaften anhand eines einheitlichen End-of-line-Tests evaluiert wurden. Weiterhin wurde entsprechend UAP 4.3 pro Formierrezeptur je eine Zelle direkt nach dem jeweiligen Aktivierungsprozess irreversibel geöffnet, deren Komponenten separiert und optisch auf Schädigungsmechanismen analysiert. Abbildung 8 stellt die vier erprobten Formiervariationen mit deren Spannungsverläufe über der Formierdauer gegenüber.

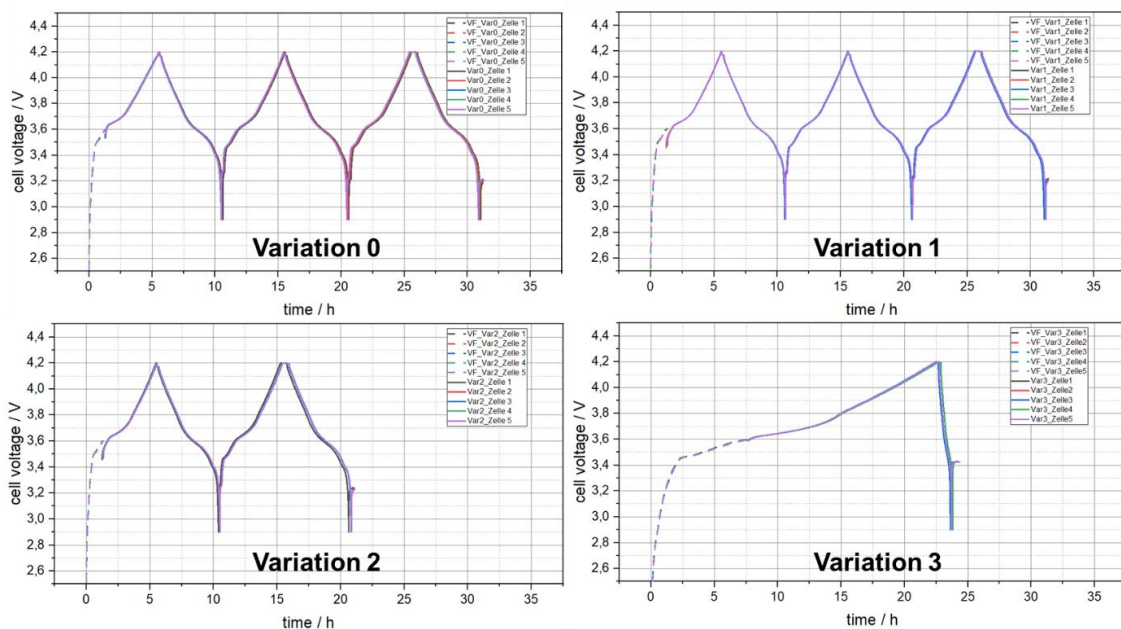


Abbildung 8: Spannungsverläufe über der Formierdauer verschiedener Formierstrategien

Für Variante 0 und Variante 1 wurden entsprechend der InZePro-Formierprozedur drei Lade-/Entladezyklen mit einer Stromstärke von C/5 angewendet. Variation 0 wurde bewusst eingeführt, um die Relevanz der Vorformierung mit anschließender Nachbenetzungszeit und deren Einfluss auf die Zellqualität zu verdeutlichen. Bei Variante 0 wurde im direkten Anschluss zur Vorformierung der Ladestrom der Formierung fortgesetzt, während bei den restlichen Varianten eine definierte Nachbenetzungszeit vorgesehen wurde, um nach der Formiergasbildung eine erneute vollständige Benetzung sämtlicher Porenstrukturen zu erhalten. Eine detaillierte Beschreibung der Vorformierung und der einzelnen Formierprozeduren sowie nähere Ausführungen zur Entstehung von Formiergas und die resultierenden Folgen sind im ersten Zwischenbericht enthalten. Variante 2 ist ebenfalls an die Parameter aus Variante 1 angelehnt. Jedoch wurde zur Verkürzung der Formierdauer auf den zweiten Lade-/Entladezyklus verzichtet.

Bei Variante 3 wird die Formierung auf nur einen Ladezyklus mit einer Stromstärke von C/20 reduziert. Die vergleichsweise geringe Ladestromstärke soll dabei eine vollständig abgeschlossene sowie eine möglichst stabile und homogene SEI-Ausbildung bewirken, was sich zusätzlich positiv auf die Dynamik der entstehenden Formiergase auswirkt. Da in Entladerichtung keine irreversiblen Reaktionen erwartet werden, wurde ein Entladestrom von 1C gewählt. Diese Formierstrategie wurde in enger Vernetzung mit dem Projekt FormEL aus dem ProZell-Cluster definiert und in Vorversuchen simuliert.

Für jede der erprobten Formiervarianten wurden fünf baugleiche Zellen mit einheitlichen Komponenten, Elektrodenlängen und Elektrolytmengen zeitgleich prozessiert. Für einen validen, aussagekräftigen Vergleich der einzelnen Formierungen ist eine hohe Reproduzierbarkeit essentiell, welche durch die Überlagerung der einzelnen Spannungsverläufe in Abbildung 8 nachgewiesen wurde. Die elektrochemische Validierung der verschiedenen Formierprozeduren erfolgte für jeweils vier der fünf formierten Zellen anhand eines einheitlichen gewählten, umfassenden End-of-line-Tests, welcher wie folgt aufgebaut ist:

1. Kapazitätsbestimmung: 2x Lade-Entladezyklen (2,9 V – 4,2 V)
Laden CCCV mit C/2 bis C/20 - Entladen CC mit C/2
2. R_i -Bestimmung @100 % SOC (gemäß IEC 61960:2011)
3. Selbstentladungstest (Lagerung @100 % SOC für 120 h)
4. Kapazitätsbestimmung: 2x Lade-Entladezyklen (2,9 V – 4,2 V)
Laden CCCV mit C/2 bis C/20 - Entladen CC mit C/2
5. Pseudo-OCV – CC-Laden/-Entladen mit C/20

Abbildung 9 veranschaulicht die gemittelten transferierten Ladungsmengen während der Formierung und auszugswise aus dem End-of-line-Test.

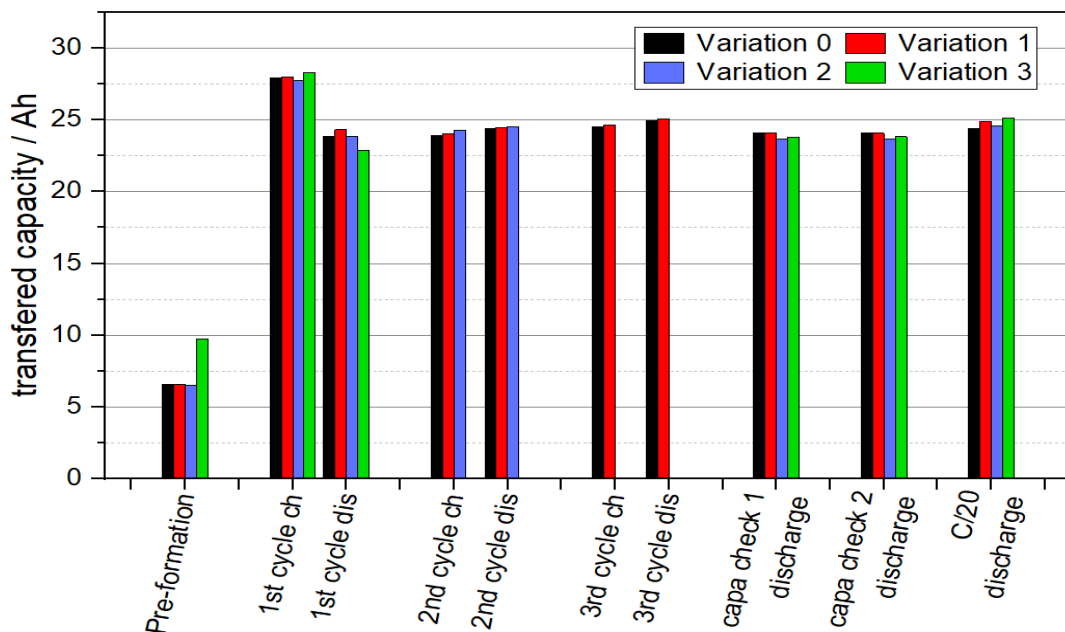


Abbildung 9: Vergleich der transferierten Ladungsmengen der erprobten Prozessvarianten während der Formierung und des End-of-line-Tests

Durch den vergleichsweise geringen Ladestrom bei Variante 3 von C/20 nähert sich die Zellspannung aufgrund der geringeren Spannungshysterese der Ruhespannung an, weshalb das spannungsbedingte Abbruchkriterium der Vorformierung deutlich später erreicht wird. Daher wird bei Variante 3 während des ersten Ladevorgangs bis zum Erreichen von 3,6 V etwa 50 % mehr Ladung in die Anode interkaliert als bei den weiteren Varianten. Die entnommene Ladung der ersten Entladung zeigt den inversen Effekt, da bei Variante 3 mit 1C schneller entladen wurde. Daher ist ein Vergleich des irreversiblen Li-Verlusts nach der ersten Ladung zwischen den Varianten nicht aussagekräftig. Obwohl die interkalierte Ladungsmenge bei der Vorformierung nahezu identisch ist, zeigt sich vor allem bei Variante 0 ein erhöhter Li-Verlust nach dem ersten Zyklus von 14,7 % in Relation zu Variante 1 mit 13,1 %. Beim Betrachten der Entladerichtung der pseudo-OCV mit C/20 ist dieser Kapazitätsunterschied zwischen Variante 0 und Variante 1 weiterhin sichtbar, was auf den Schädigungseffekt Li-Plating aufgrund der fehlenden Nachbenetzungszeit bei Variante 0 schließen lässt. Die vergleichbaren Ladungsmengen der Varianten 2 und 3 zeigen anhand des End-of-line-Tests im direkten Anschluss zur Formierung trotz der beschleunigten Prozeduren keine negativen Auswirkungen auf die Zellqualität. In Unterkapitel 4.3 konnten auch mittels dem Zellrückbau und optischer Analyse der Zellkomponenten keinerlei Schädigungsmechanismen identifiziert werden. Mithilfe von Langzeitzyklisierungen und weiteren qualitativen Analysen wurde die Auswirkung auf die Zellqualität und die Lebensdauer im späteren Projektverlauf untersucht.

Mit den Ergebnissen der elektrochemischen Charakterisierung wurde belegt, dass durch die Erprobung beschleunigter Formierprozeduren bereits ohne eine KI-Implementierung eine zeitliche Reduktion von ca. 31 Stunden auf etwa 23 Stunden erzielt werden konnte. Wegen der ausgeprägten ersten Ladephase, welche maßgeblich zur Bildung einer hochqualitativen SEI beiträgt, wird bei der Formiervariante 3 ein erhöhtes Potential für einen intelligenten live-Eingriff zur weiteren Beschleunigung des Formierprozesses erwartet. Die Auswahl der Prozessparameter für die Referenzformierung des Benchmarking-Datensatzes basiert auf einer festgelegten, maximalen Formierdauer von 24 Stunden nach dem industriellen Standard. Als essentielle Grundvoraussetzung für eine geeignete Formierung ist eine vollständig ausgebildete homogene SEI (solid electrolyte interface) unter der Berücksichtigung der Zellqualität und der Vermeidung sämtlicher Degradationsmechanismen. Daher wurde als Referenzformierung im Projekt InForm die Prozedur entsprechend Variante 3 gewählt.

Durch die Herstellung und Formierung von großformatigen Pouchzellen konnte nachgewiesen werden, dass die gewählte Prozedur der Referenzformierung auf weitere Zellformate übertragbar ist. In Abbildung 10 sind die Spannungsverläufe der Referenzformierung von prismatischen Hardcase-Zellen im PHEV1-Format sowie für großformatige Pouchzellen über der flächenspezifischen Kapazität aufgetragen. Zudem liefert Tabelle 1 eine Übersicht der absoluten und flächenspezifischen transferierten Ladungsmengen sowie des irreversiblen Lithiumverlusts während der Formierung.

Da für die Zellherstellung identische Elektroden benutzt wurden, wird für den Vergleich von zwei verschiedenen Zellformaten mit unterschiedlichen Kapazitäten die transferierte Ladungsmenge bezogen auf die aktive Kathodenfläche herangezogen.

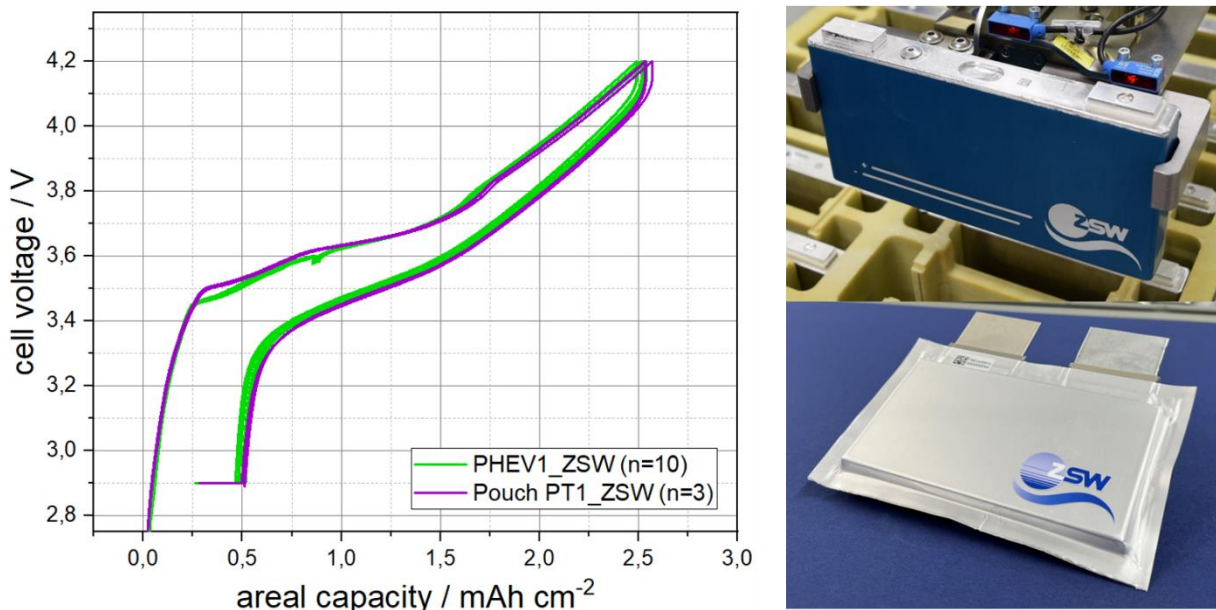


Abbildung 10: Spannungsverläufe während der Referenzformierung von Hardcase-Zellen im PHEV1-Format und großformatigen Pouchzellen über der flächenspezifischen Kapazität

Tabelle 1: Vergleich der Formierungsdaten von prismatischen PHEV1- und großformatigen Pouchzellen

	Einheit		PHEV1 (n=10)	Pouch (n=3)
Aktive Kathodenfläche	cm ²		11120,00	9133,76
Ladekapazität 1. Zyklus	Ah	Mittelwert Std-Abw.	28,05 0,206	23,25 0,181
Spez. Flächenkapazität Laden 1. Zyklus	mAh / cm ²	Mittelwert Std-Abw.	2,52 0,018	2,54 0,020
Entladekapazität 1. Zyklus	Ah	Mittelwert Std-Abw.	24,81 0,115	20,59 0,060
Spez. Flächenkapazität Entladen 1. Zyklus	mAh / cm ²	Mittelwert Std-Abw.	2,23 0,010	2,25 0,007
Irreversibler Lithiumverlust 1. Zyklus	%	Mittelwert Std-Abw.	11,56 0,720	11,45 0,459

Zur weiteren Optimierung der Formierungsdauer wurde eine alternative Formierungsmethodik auf Basis physiko-chemischer Modelle mit dem Helmholtz-Institut entwickelt und zunächst aus Sicherheitsgründen an kleinformatischen Knopfzellen erprobt. Anschließend wurde diese Methodik am ZSW auf das großformatige PHEV1-Format skaliert und getestet. Die Ergebnisse aus dem ersten Projektjahr haben gezeigt, dass die Gasbildung während der Ausbildung der SEI bei prismatischen Hardcase-Zellen bereits bei Strömen von etwa C/5 zu Schädigungseffekten führen kann. Deshalb wurde eine Strategie aus periodischen Strompulsen von 3,0 Sekunden mit einer Stromstärke von C/5,8 mit jeweils einer

anschließenden Pause von 1,3 Sekunde entwickelt, um durch die kurzen Strompausen eine möglichst schonende Interkalation der Li-Ionen in die Anodenstruktur zu erreichen. Aufgrund der wiederkehrenden Pausen können die angereicherten Li-Ionen auf der Anodenoberfläche in die Graphitstrukturen diffundieren. Da dadurch höhere Stromraten möglich sind, wird durch die pulsierte Formierung eine Reduzierung der Formierdauer im Vergleich zur Referenzformierung ermöglicht.

In Abbildung 11 a) ist der zeitliche Verlauf der Zellspannungen der erprobten pulsierten Formierung für fünf baugleiche PHEV1-Zellen sowie ein Spannungsverlauf der Referenzformierung aufgetragen. Abbildung 11 b) visualisiert dagegen jeweils den Spannungsverlauf beider Formiervarianten über der transferierten Ladungsmenge.

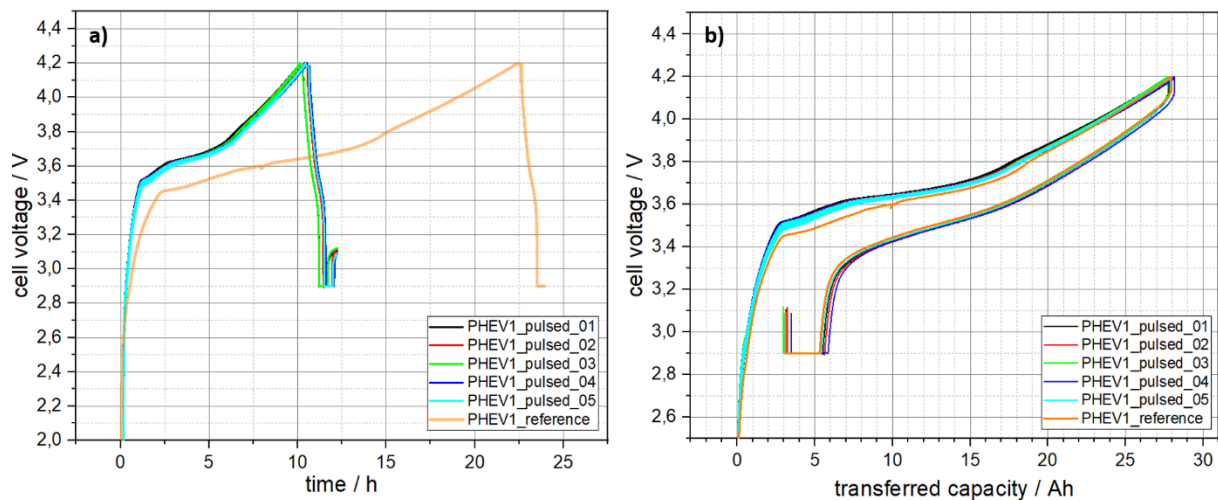


Abbildung 11: a) Veranschaulichung der Zeitreduktion durch die pulsierte Formierung; b) Spannungsverläufe der Referenzformierung und pulsierten Formierung über der transferierten Ladungsmenge

Beim Betrachten von Abbildung 11 a) wird die erhebliche Beschleunigung des Formierungsprozesses von etwa 23 Stunden bei der Referenzformierung auf ca. 12 Stunden verdeutlicht. Abbildung 11 b) zeigt eine hohe Übereinstimmung des Spannungsverlaufs während der transferierten Ladungsmengen. Die höhere Spannungshysterese der pulsierten Formierung im Bereich bis etwa 3,8 V lässt sich auf stärkere Spannungssprünge aufgrund höherer Ladestromstärker zurückführen. Während des ersten Ladezyklus werden bei der pulsierten Formierung 27,89 Ah ($\pm 0,17$ Ah) interkaliert, bei der Referenzformierung werden dagegen 28,05 Ah ($\pm 0,21$ Ah) eingeladen. Bei der pulsierten Formierung werden während des Entladevorgangs 24,71 Ah ($\pm 0,10$ Ah) transferiert, was einem Li-Verlust von 11,37 % ($\pm 0,63$ %) entspricht. Der Li-Verlust bei der Referenzformierung beträgt 11,56 % ($\pm 0,72$ %) bei einer Entladungsmenge von 24,81 ($\pm 0,12$ %). Beim Vergleich der elektrochemischen Daten können keine signifikanten Qualitätseinbußen aufgrund der pulsierten Formierungsmethode ausgemacht werden.

c) AP 3: UAP 3.4 Online Analytik zur Identifikation von Gas, Druck und Verformung

Beim Verspannen von Batteriezellen ist ein homogener Verspanndruck auf die gesamte Elektrodenfläche von essentiell, um inhomogene Stromdichten zu vermeiden. Durch das starre, formstabile Aluminiumgehäuse von prismatischen Hardcasezellen wird die Beaufschlagung eines äußeren homogenen Verspanndrucks auf die Elektroden erheblich erschwert. Dennoch ist es sinnvoll eine Volumenexpansion und die resultierende Verformung (Bauchung) von Hardcasezellen durch eine starre Aufnahme im Warenträger und einen definierten Vorspanndruck zu begrenzen und damit den Druck auf die Elektroden über das Zellgehäuse zu übertragen. Mittels Kraftmessdosen kann die Zunahme des Drucks während der Volumenausdehnung gemessen und analysiert werden.

Die flexible Aluminiumverbundfolie, welche als Zellgehäuse von Pouchzellen fungiert, ermöglicht dagegen eine unkomplizierte Verspannung der Zellen von außen. Zur Untersuchung des Einflusses einer vollflächigen Verspannung auf die gesamte Elektrodenfläche wurden Pouchzellen mit einheitlichen Komponenten und Prozessparametern hergestellt und zur Formierung in einen verspannbaren Warenträger mit einer aufblasbaren Membran gegeben. Dabei wurde die Verspannung einerseits lediglich durch die Membran auf die Pouchzelle übertragen, wodurch keine vollflächige Verspannung erreicht werden konnte. Zum anderen wurde der Verspanndruck mittels einer formstabilen Adapterplatte von der Membran vollflächig auf die gesamte Elektrodenfläche übertragen. In beiden Fällen wurde zusätzlich eine Druckmessfolie auf die Pouchfolie eingelegt, um die tatsächlich verspannte Fläche identifizieren zu können. Während der gesamten Formierung wurde ein konstanter Druck von 1 bar gewählt. In Abbildung 12 wird die Einflussuntersuchung des Verspanndrucks mit Druckmessfolien anhand einer vollflächig verspannten Pouchzelle und einer Zelle mit verspannter Teilfläche illustriert.

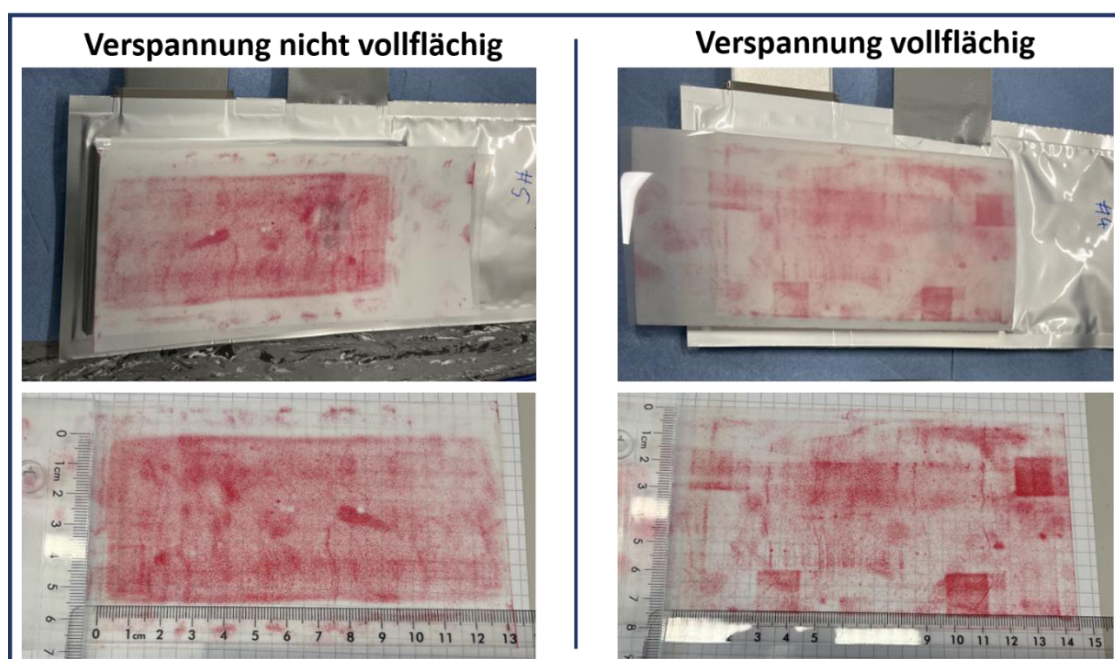


Abbildung 12: Einflussuntersuchung der flächenabhängigen Verspannung an gefertigten Pouchzellen mit Druckmessfolien

Die rötliche Verfärbung auf den Druckmessfolien veranschaulicht die wirksame Anpressfläche auf die jeweilige Pouchzelle. Dabei wird verdeutlicht, dass eine Verspannung ohne Adapterplatte zwischen Spannmembran und Zelle nur auf eine Teilfläche des Elektrodenstapels wirkt. Entsprechend des Abdrucks auf der Druckmessfolie wurden ohne Adapterplatte lediglich 71,5 cm² verspannt, während mit einer Adapterplatte der Druck vollflächig auf 104,25 cm² übertragen wurden. Die Auswirkungen einer verpressten Teilfläche wurden entsprechend UAP 4.3 anhand eines Zellrückbaus analysiert.

Das Prinzip von Archimedes konnte hingegen angewendet werden, um das reale Volumen bzw. die Gasentwicklung innerhalb einer Zelle zu bestimmen. Das Gewichtsunterschied eines Körpers, wenn dieser vollständig in eine Flüssigkeit getaucht wird im Vergleich zu dessen Masse in trockener Atmosphäre entspricht dem Gewicht der durch das Objekt verschobenen Flüssigkeit, mit der das Volumen des Objekts berechnet werden kann. Da in diesem Fall teilgeladene Batteriezellen gemessen werden, muss es sich beim verwendeten Medium zur Vermeidung von externen Kurzschlüssen zwingend um vollentsalztes Wasser handeln. In Abbildung 12 ist der entwickelte Versuchsstand zur Erfassung des Zellvolumens nach dem Archimedes-Prinzip dargestellt.

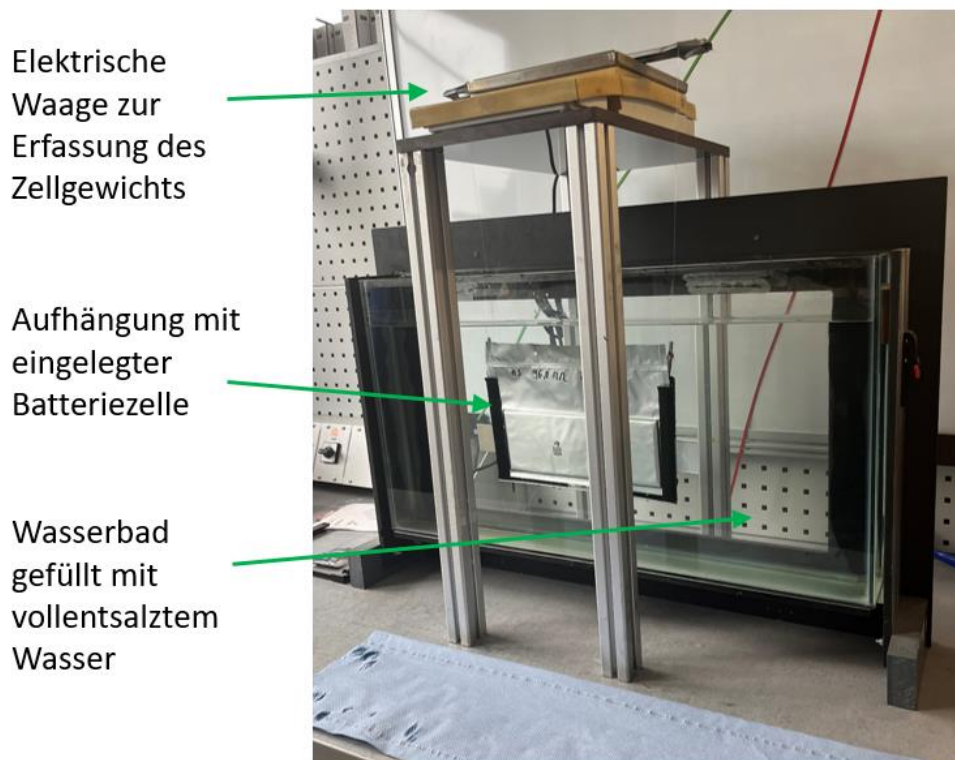


Abbildung 13: Versuchsaufbau zur Volumenbestimmung von Batteriezellen nach dem Archimedes-Prinzip

Durch eine Wiederholung der Volumenbestimmung bei verschiedenen Zuständen der Zelle kann die Ausbildung von Gas innerhalb der Zelle präzise erfasst werden. Da die Gasbildung maßgeblich durch Nebenreaktionen während Ausbildung der elektrochemischen Grenzschichten auf den Elektrodenoberflächen, also während des Formierprozesses stattfindet, wird das Zellvolumen kurz vor dem Start der Formierung

im befüllten Zustand und unmittelbar nach Beendigung der Formierung durchgeführt. Die Abweichung des jeweiligen Zellvolumens kann direkt auf die entstandenen Gase zurückgeführt werden. Zusätzlich wird als Kontrollmessung das Zellvolumen nach Durchführung des Entgasungsprozesses und nach Abtrennung der Gastasche durchgeführt.

Im Rahmen von Arbeitspaket 5 wurde die entwickelte Schnittstelle zum Live-Eingriff in den Formierungsprozess in die Formierungsanlage des ZSW implementiert. In diesem Zusammenhang wurden zur Erprobung und Validierung unterschiedlicher Formierstrategien mit einem einheitlichen Zelltyp durchgeführt. Eine detaillierte Beschreibung des Versuchs ist in Abschnitt e) AP5: Anlagenintegration der Formierungsoptimierung und Diagnostik zu finden.

Zur Identifikation des Gasungsverhaltens in Abhängigkeit verschiedener beschleunigter Formierprozeduren wurden die Zellvolumina entsprechend der Versuchsreihe durchgeführt. Als Vergleichsmessung wurden drei Zellen mit der im Projekt entwickelten Referenzformierung (Reference) produziert. Bei Variation 1 wurde der Ladestrom nach Erreichen eines stabilen Spannungsbereichs (ca. 3,6 V) zunächst verdoppelt und anschließend verdreifacht. Eine weitere Erhöhung des Ladestroms wurde bei Variation 2 bei ca. 3,6 V um Faktor 3 und bei 3,7 V um Faktor 5 durchgeführt.

Abbildung 14 illustriert die erfassten Zellvolumina nach Versuchsreihen jeweils im Zustand nach der Befüllung, nach der Formierung und im Anschluss des Entgasungsschrittes. Des Weiteren ist der gemessene Volumenzuwachs vom Zustand vor und nach der entsprechenden Formierungsprozedur dargestellt.

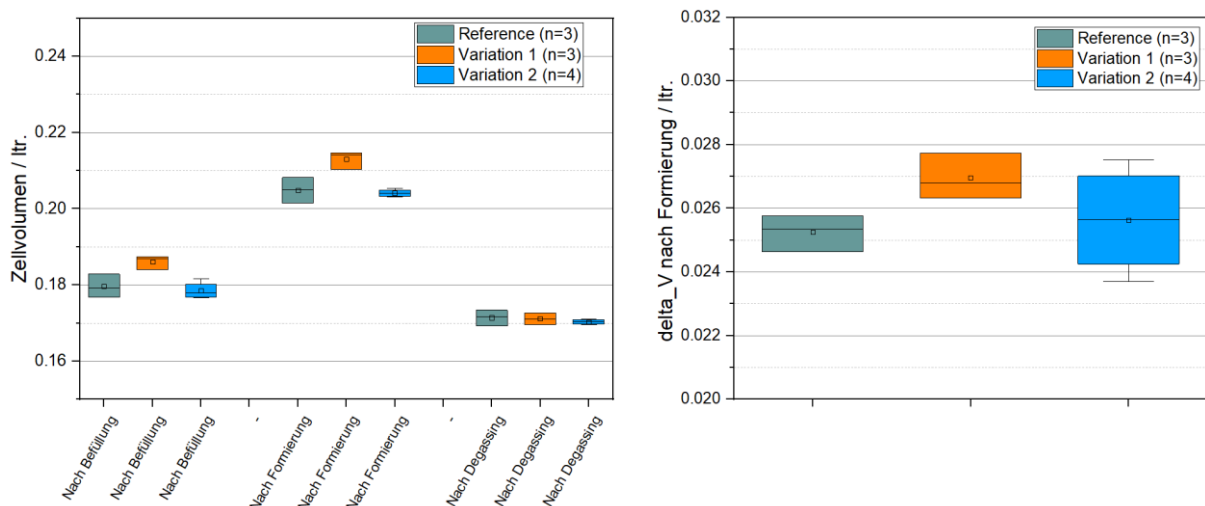


Abbildung 14: Erfasstes Zellvolumen bei unterschiedlichen Zuständen (links) und Volumenänderung während der Formierung (rechts) jeweils unterteilt nach verschiedenen Formierprozeduren

Aus Abbildung 14 geht eine Volumenzunahme während des Formierungsprozess bei den drei Formierstrategien hervor, welche hauptsächlich auf Nebenreaktionen während der Ausbildung der Elektrodengrenzschichten zurückzuführen ist. Die erfasste Gasmenge zeigt jedoch nur eine geringfügige Abweichung zwischen den einzelnen Prozeduren. Grund hierfür ist die Erhöhung der Ladeströme bei Variation 1 und Variation 2 beim Erreichen der Zellspannung von 3,6 V, da bei diesem Spannungswert die Ausbildung Grenzschichten bereits hauptsächlich abgeschlossen

ist. Da bei allen dreien Formierstrategien bis zum Erreichen von 3,6 V ein einheitlicher Ladestrom von C/20 gewählt wurde, hat die anschließende Steigerung des Ladestroms nahezu keinen Einfluss auf die weitere Gasbildung in der Zelle. Durch die Kontrollmessung des Zellvolumens nach der Entgasung und Abtrennung der Gastasche können potentielle Abweichungen, welche auf den Assemblierungsprozess zurückzuführen sind sowie irreversible Effekte aufgrund einer fehlerhaften Formierung, identifiziert werden.

Die jeweilige transferierte Entladungsmenge während des ersten Zyklus sowie die resultierende Coulomb'schen Effizienz der unterschiedlichen Formierprozeduren in Abbildung 15 beschreibt die elektrochemische Leistungseigenschaft der Batteriezelle nach der Formierung. Beim Vergleich der entnommenen Ladungsmenge ist kein negativer Einfluss aufgrund der Stromerhöhung im oberen Spannungsniveau bei Variation 1 und Variation 2 im Vergleich zur Referenzformierung zu erkennen. Beim Betrachten der Coulomb'schen Effizienz kann eine gewisse Korrelation zur entstanden Gasmenge während der Formierung gedeutet werden. Die Coulomb'sche Effizienz des ersten Formierzyklus ergibt sich aus der ersten Entlademenge im Vergleich zur ersten Ladungsmenge in Laderichtung. Die Differenz wird durch den Verlust von Lithium zur Ausbildung der Elektrodengrenzschichten, welche proportional mit der Gasbildung durch Nebenreaktionen einhergehen, bestimmt. Verdeutlicht wird dies durch die etwas niedrigere Coulomb'sche Effizienz von Variation 1, während eine stärkere Volumenzunahme im Vergleich zu den alternativen Prozeduren gemessen wurde.

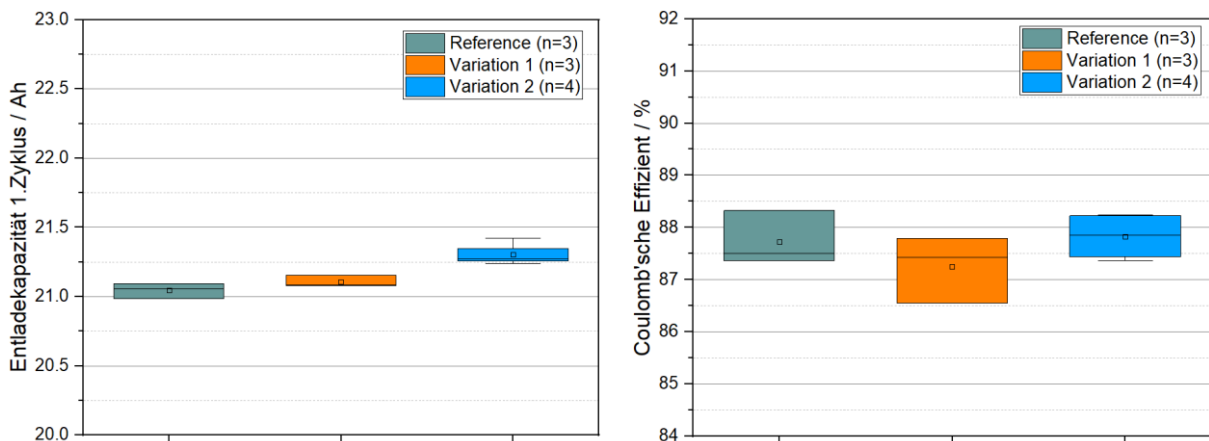


Abbildung 15: Vergleich der transferierten Ladungsmenge in Entladerichtung (links) und Coulomb'sche Effizienz (rechts) des 1. Zyklus in Abhängigkeit unterschiedlicher Formierprozeduren

d) AP 4: Offline Analytik

Unterarbeitspaket **UAP 4.1** befasste sich mit der Entwicklung von Zyklisierungsprozeduren zur frühzeitigen Alterungsbestimmung. Um zuverlässige Prognosen über die Alterungseigenschaften treffen zu können, wurde für jeweils fünf Zellen der erprobten Formierstrategien eine Zyklisierung über 300 Lade-/Entladezyklen mit einer Stromstärke von 1C durchgeführt. Für eine nähere Degradationsbetrachtung wurde zu Beginn der Zyklisierung sowie nach jeden weiteren 50 Alterungszyklen ein hochaufgelöster Lade-/Entladungszyklus mit C/20 aufgezeichnet. In Abbildung 16 sind die Alterungsverläufe der vier verschiedenen Formierstrategien aufgetragen, welche im Rahmen von UAP 2.3 erprobt wurden. Als ursprüngliche Referenz wurde die im InZePro-Cluster definierte Formierung mit drei Ladezyklen (Stromstärke C/5) gewählt. Diese InZePro-Formiervariante wurde sowohl mit als auch ohne ausreichende Pause zur Nachbenetzung nach der Vorformierung durchgeführt. Des Weiteren sind die Degradationsverläufe der InForm Referenzformierung sowie der pulsierten Formierung abgebildet. Zur Ermittlung des Alterungszustands wurde die Entladekapazität über der Zyklenzahl aufgetragen. Die horizontale orangefarbene Gerade symbolisiert das definierte Lebensdauerende bei einer verfügbaren Restkapazität von 80 %.

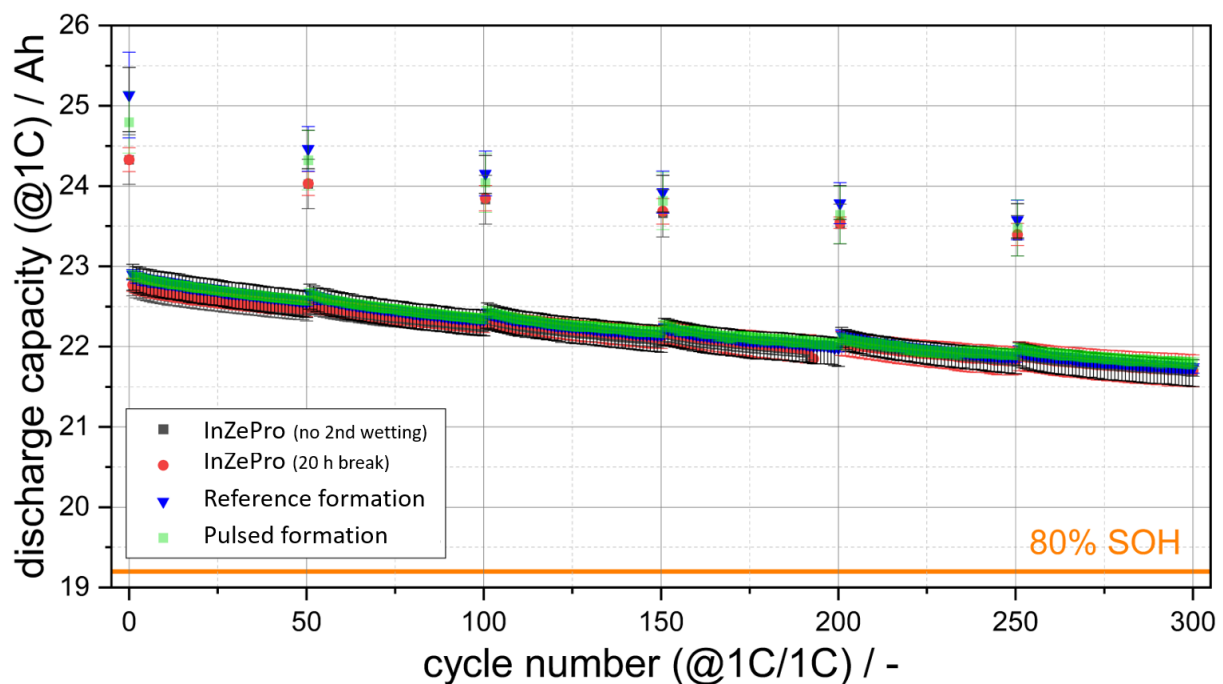


Abbildung 16: Verlauf der nutzbaren Zellkapazität über der Zyklenzahl zur Veranschaulichung der Zellaalterung in Abhängigkeit der verwendeten Formierstrategie

Beim Betrachten der einzelnen Alterungsverläufe ist ein übereinstimmender Degradationstrend zwischen den einzelnen Formiervarianten erkenntlich, was auf eine sehr hohe Qualität der assemblierten Zellen schließen lässt. Nach 300 durchlaufenen Alterungszyklen liegt die verbleibende Zellkapazität bei sämtlichen Varianten im Mittel bei 95-96 % SOH. Die Kontrollzyklen zu Beginn der Langzeitzyklisierung und nach allen weiteren 50 Zyklen zeigen bei der InForm Referenzformierung die höchste verfügbare Entladekapazität.

Die Streubreite der einzelnen Formiervarianten verdeutlicht das Maß an Reproduzierbarkeit und damit auch die Zellqualität. Entsprechend der Größe der Fehlerbalken verfügen die beiden InZePro-Formierprozeduren über eine verhältnismäßig hohe Streuung, während die Variante ohne Pause zur Nachbenetzung nach der Vorformierung ebenfalls die stärkste Degradation aufweist. Dies lässt sich auf das partielle Li-Plating zurückführen, welches durch den Zellrückbau nach der Formierung detektiert werden konnte und über den Alterungsverlauf verstärkt wurde. Sowohl die InForm Referenzformierung als auch die pulsierte Formierung weisen dagegen äußerst geringe Streubreiten auf. Damit konnte die Reproduzierbarkeit der Zellen über den Degradationsverlauf und damit die Zellqualität durch die Entwicklung und Optimierung von Formierstrategien im Projektverlauf bereits verbessert werden.

Im Rahmen von **UAP 4.2** wurden zerstörungsfreie CT-Scans an gefertigten Pouchzellen durchgeführt, um fehlerhafte Elektrodenstapel zu identifizieren und bereits vor den zeit- und kostenintensiven Prozessschritten, dem Elektrolytbefüllen mit Benetzungszeit und der Formierung der Zellen aussortieren zu können. Abbildung 17 illustriert die CT-Aufnahme des Elektrodenstapels einer assemblierten Pouchzellen vor der Elektrolytbefüllung. Zusätzlich sind der vertikale und horizontale Querschnitt abgebildet, anhand welchen das Elektrodenalignment und mögliche parasitäre Partikel im Stapelbereich identifiziert werden können, ohne die Zelle irreversibel zu zerstören.

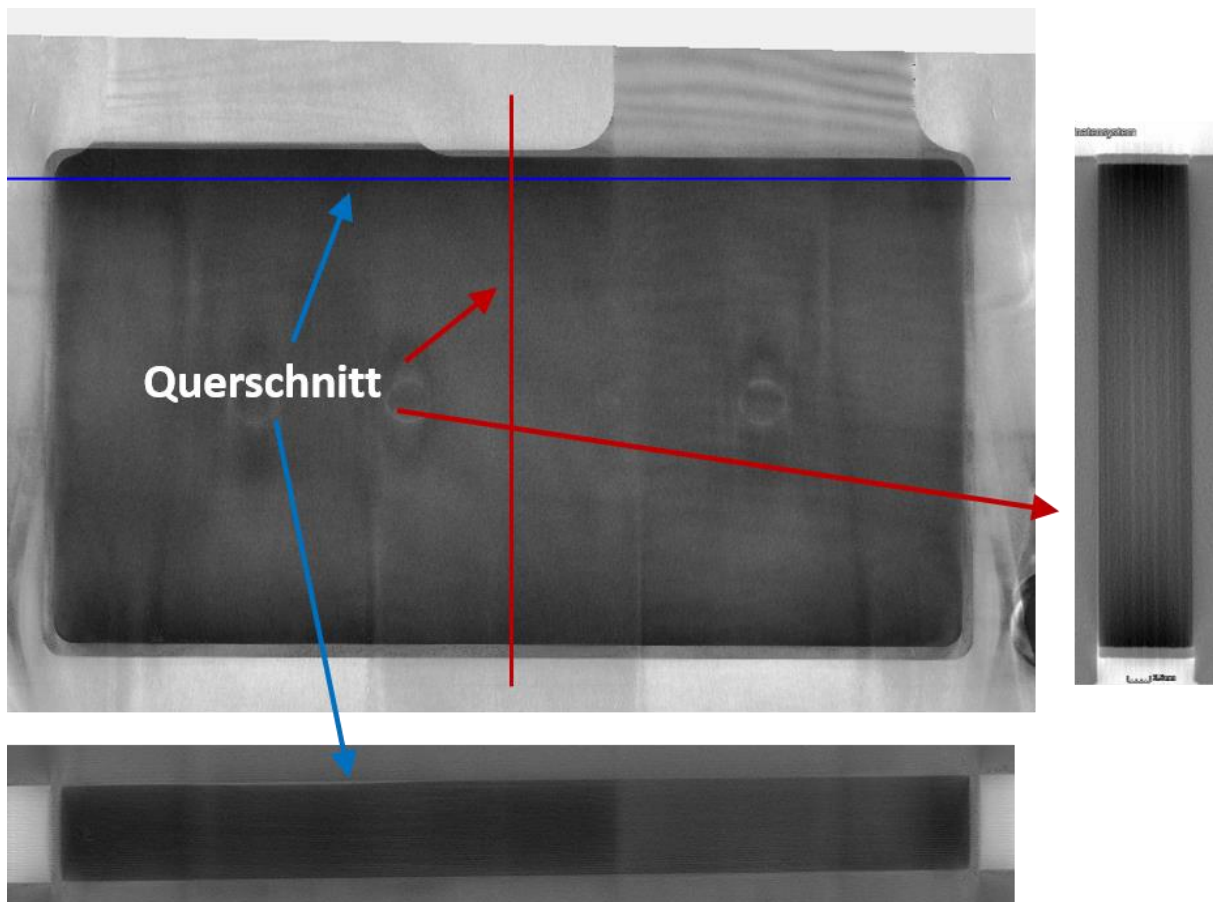


Abbildung 17: CT-Scan des Elektrodenstapels einer gefertigten Pouchzelle mit vertikalem und horizontalem Querschnitt zur Bestimmung des Elektrodenalignments

Dagegen sind beispielhaft in Abbildung 18 die Querschnitte von Elektrodenstapel mit einem homogenen und vergleichsweise symmetrischen Alignments sowie eines Stapels mit stark inhomogenem Alignment visualisiert. Eine fehlerhafte Ausrichtung von Anode zu Kathode kann zu freiliegenden Kathodenbereichen führen, wodurch der Effekt des Li-Platings an der angrenzenden Anodenkante begünstigt wird und ein erhebliches Sicherheitsrisiko darstellt. Darüber hinaus ist in Abbildung 18 ein weiterer Elektrodenstapel mit einem parasitären Aluminiumschnipsel im Bereich der Elektrodenkanten abgebildet.

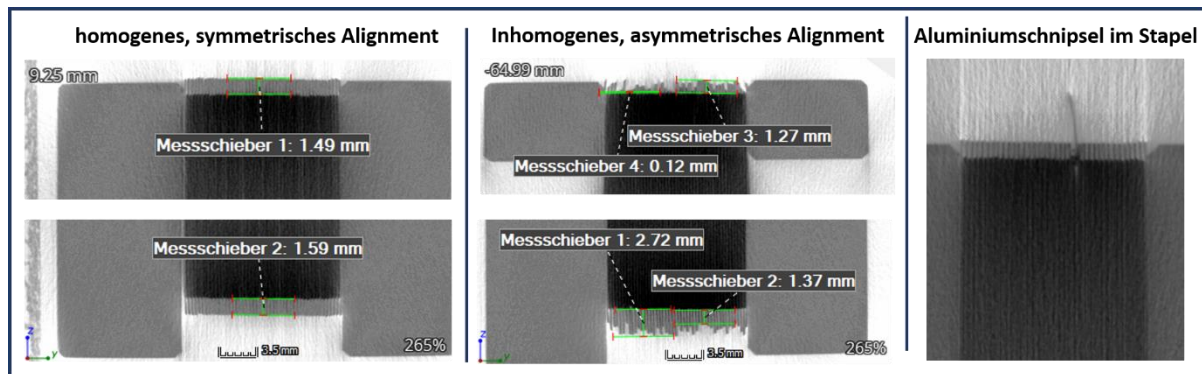


Abbildung 18: CT-Querschnitte zur Veranschaulichung eines homogenen, symmetrischen und eines fehlerhaften Elektrodenalignments sowie eines parasitären Fremdkörpers im Stapelbereich

Daher eignet sich die Anwendung von CT-Scans bereits vor der Aktivierung von Batteriezellen, um potentielle Fehler in der Assemblierung festzustellen und entsprechende Zellen auszusortieren. Dies verringert nicht nur Prozesskosten durch weitere unnötige Prozessschritte an bereits fehlerhaften Zellen, sondern erhöht ebenfalls die Sicherheit im späteren Zellbetrieb.

Mithilfe optischer und chemischer Post-Mortem-Analysen wurden im **UAP 4.3** die einzelnen Formiervarianten validiert. Dabei wurde für jede Formierstrategie eine Zelle direkt nach Beendigung des Formierprozesses geöffnet, rückgebaut und optisch auf potentielle Schädigungsmechanismen untersucht. Abbildung 19 stellt für jede Formiervariante einen Auszug der Anodenoberfläche gegenüber.

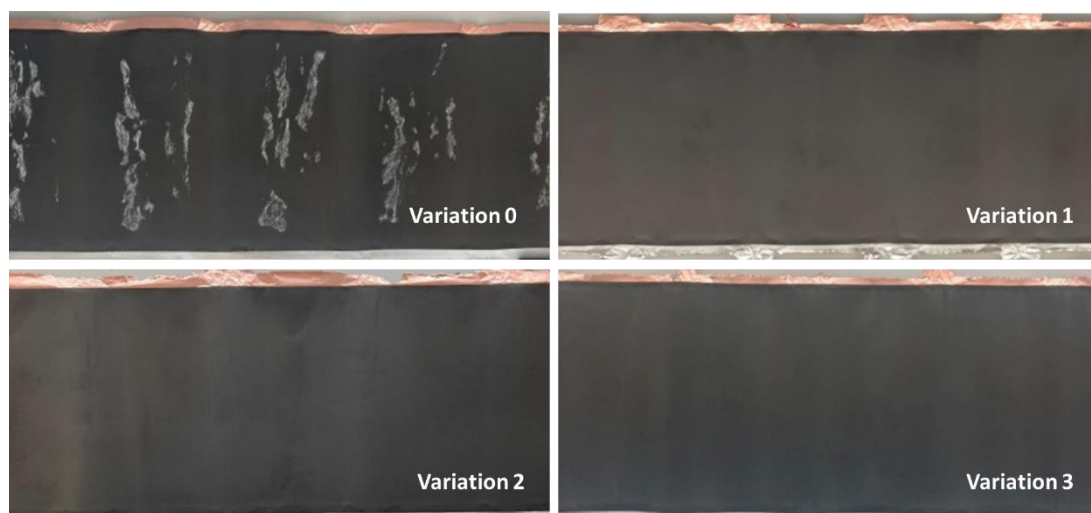


Abbildung 19: Optische Analyse der Anoden der erprobten Formiervarianten zur Identifikation von Li-Plating

Mithilfe der optischen Post-Mortem-Analyse konnten die separierten Anoden der einzelnen Formiervarianten auf Li-Plating untersucht werden. Dabei wurden bei Variation 0 erwartungsgemäß, beidseitige Ablagerungen von Li-Metall auf der gesamten Anodenlänge identifiziert. Bei den restlichen Varianten konnten durch die optische Betrachtung keine markanten Schädigungsmechanismen festgestellt werden.

Wie bereits im Abschnitt 3.4 beschrieben, wurden die Einflussuntersuchungen des Verspanndrucks auf die Stapelfläche von Pouchzellen in Unterarbeitspaket 4.3 zusätzlich durch den Rückbau der Zellen und Post-Mortem-Analysen analysiert. Dafür wurden die Pouchzellen mit und ohne Adapterplatte zwischen der Verspannmembran des Warenträgers und den Zellen mit einem konstanten Anpressdruck von 1 bar mit identischer Formierrezeptur aktiviert und im direkten Anschluss bei einem Ladezustand von 0% SOC auf die einzelnen Komponenten rückgebaut.

Beim Öffnen der Zellen waren auf der Innenseite der Pouchfolie vereinzelte Elektrolyttröpfchen sichtbar, was auf eine adäquate Elektrolytmenge hindeutet. Der gesamte Stapel sollte ausreichend mit Elektrolyt getränkt sein, um eine vollständige Benetzung der Porenstrukturen der Elektroden und der Separatoreinzelblätter zu gewährleisten. Allerdings sollte bei Pouchzellen nahezu kein überschüssiger Elektrolyt vorhanden sein, da dadurch der homogene Anpressdruck der Pouchfolie auf den Elektrodenstapel gestört wird. In Abbildung 20 sind die separierten Anodeneinzelblätter der jeweils formierten Pouchzellen dargestellt.

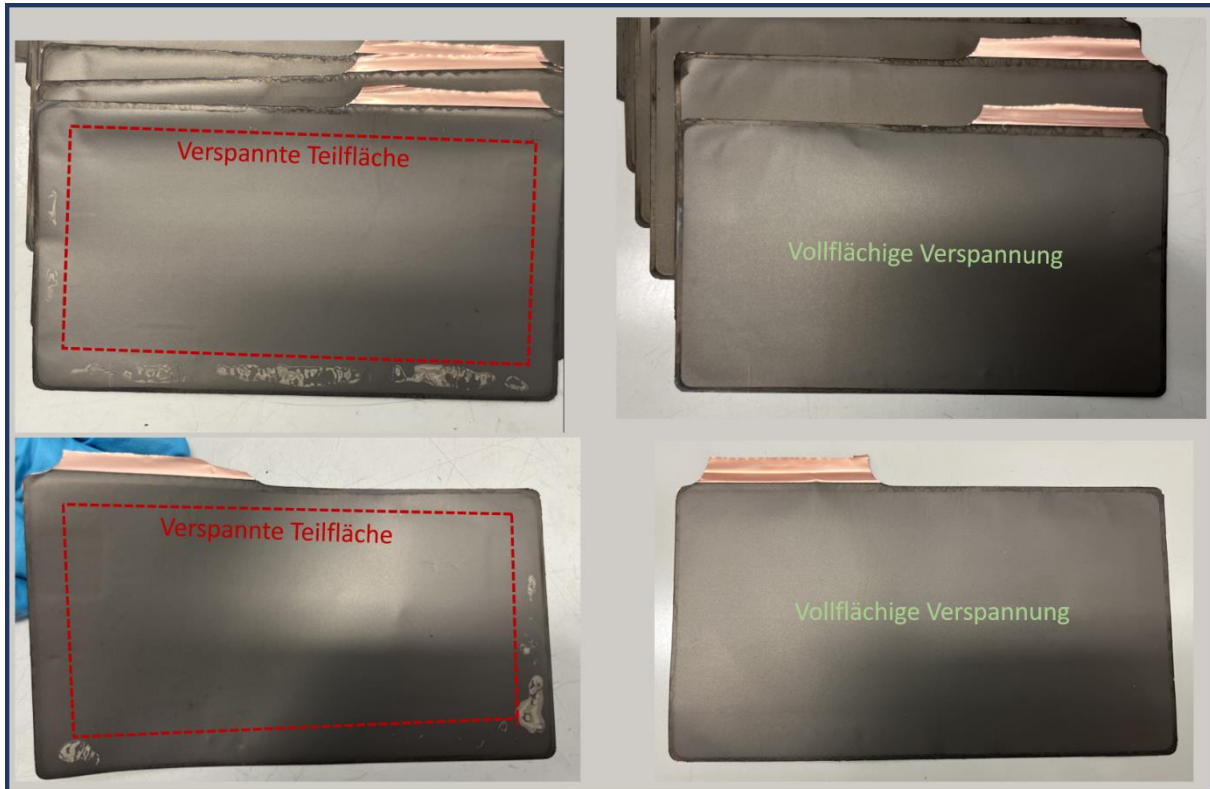


Abbildung 20: Optische Analyse der Anodeneinzelblätter von formierten Pouchzellen zur Identifikation von Li-Plating aufgrund einer vollflächigen und teilflächigen Verspannung

Anhand der dunklen Ränder auf den Vorder- und Rückseiten der Anodeneinzelblätter kann die symmetrische Positionierung der Kathodenlagen gemäß den CT-Aufnahmen erkannt werden. Die optische Analyse der Elektrodenstapel mit verspannter Teilfläche zeigt signifikantes Li-Plating in den nichtverspannten Randbereichen. Die verspannte Teilfläche resultiert in inhomogenen Stromdichten während der Interkalation in die Anodenstrukturen. Dabei kommt es zu partiellen Ansammlungen von Li-Ionen, welche sich auf der Anodenoberfläche zu metallischen Li-Atomen abscheiden. Dagegen ist bei den vollflächig verspannten Pouchzellen kein partielles Li-Plating auf der Anodenoberfläche erkennbar. Daher ist ein vollflächiger und homogener Anpressdruck auf die gesamte Elektrodenfläche essentiell, um Schädigungsmechanismen wie Li-Plating möglichst zu vermeiden.

e) AP 5: Anlagenintegration der Formierungsoptimierung und Diagnostik

Um es externen Anwendungen zu ermöglichen in den Formierprozess aktiv einzugreifen, wurde eine Schnittstelle geschaffen, über die bestimmte Werte eines Prozessschrittes zur Laufzeit einer Formiersequenz verändert werden können. Anhand einer Software-Erweiterung wurde der Rezepteditor im verwendeten Formiermanager des Anlagenherstellers thyssenkrupp befähigt, kontinuierlich Live-Werte aus laufenden Formierprozessen über einen Webdienst zur Verfügung zu stellen und durch eine externe Anwendung neu zu parametrieren. Dafür wurde ein weiterer Prozessbaustein geschaffen, welcher als einzelner Schritt innerhalb einer erstellten Formiersequenz fungiert. Während des gesamten Rezeptablaufs werden Live-Daten für Strom, Spannung, Temperaturen sowie Ladungs- und Energiemengen an einen REST (Representational State Transfer) API-Webservice gesendet. Solange der Baustein CC-R (Constant Current Remote) aktiv ist, können zudem Stromwerte pro Kanal von außen dauerhaft geändert werden, bis ein definiertes Kriterium zur Weiterschaltung in den folgenden Prozessschritt erfolgt. Sollte der Webdienst von der externen Anwendung (KI) und in Folge auch der Formiercontroller für eine bestimmte Zeit keine neuen Werte erhalten, wird der Wert des eingestellten Initialstroms angewendet. Als weitere Sicherheitsbedingung kann ein gezieltes Spannungsfenster, in welchem ein Live-Eingriff erfolgen darf, sowie Grenzen für Stromwerte eingestellt werden.

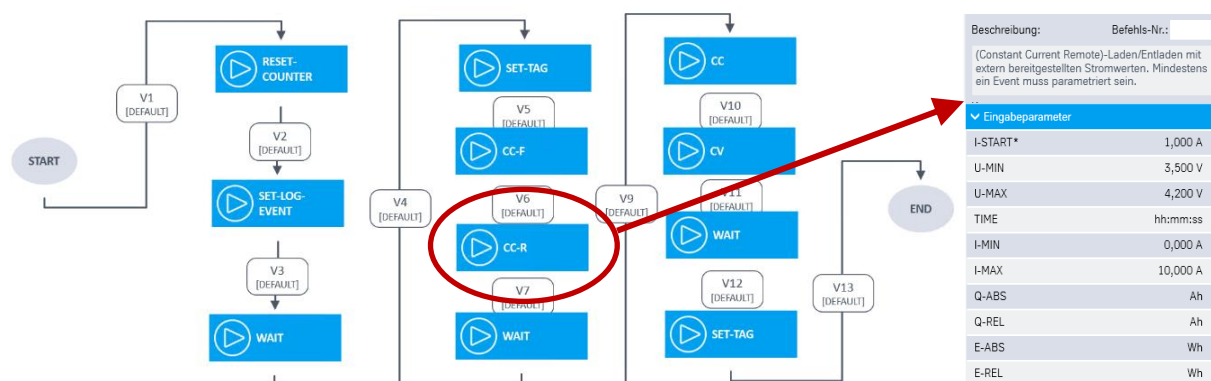


Abbildung 21: Schematischer Ablaufplan der InForm-Formierprozedur mit Baustein für den extern gesteuerten Live-Eingriff auf Lade- und Entladestrom

In Abbildung 21 ist die im Projekt InForm definierte Formierprozedur als schematischer Ablaufplan dargestellt. Der neu implementierte Funktionsbaustein CC-R ist dabei mit dessen Eingabeparametern hervorgehoben. Der Parameter I-START beschreibt den Initialstrom, welcher während des Prozessschritts aktiv ist, falls keine abweichende externe Eingabe erfolgt. Mit den Eingabegrößen U-MIN und U-MAX kann ein Spannungsfenster definiert werden, in welchem eine Live-Eingabe erfolgen darf. I-MIN und I-MAX stellen maximale Absolutwerte für die Eingabe von Lade- und Entladestrom dar, damit der Baustein auch gegebenenfalls in Entladerichtung angewendet werden kann und zudem das Risiko von fehlerhaften, zu hohen Stromstärken bzw. Strompulsen eingeschränkt wird. Würde weitere Parameter wie TIME, Q-ABS, Q-REL, E-ABS und E-REL können weitere Bedingungen zur Weiterschaltung über die Zeit bzw. transferierte Ladungs- und Energiemengen programmiert werden.

Für die Validierung wurden wie bereits in Abschnitt UAP 3.4 erwähnt einheitliche Pouchzellen assembliert und mit drei unterschiedlichen Prozeduren formiert. Als Basis für den Vergleich unter den Strategien wurde die im Projekt definierte Referenzformierung verwendet, welche einen konstanten Ladestrom von C/20 über das gesamte Spannungsfenster aufweist. Daneben wurden bei Variante 1 und Variante 2 veränderte Stromwerte über den Webdienst eingestellt, um die Formierdauer durch eine reduzierte Ladezeit zu optimieren. In Abbildung 22 sind die zugehörigen Spannungs- und Stromverläufe für die einzelnen Formiervarianten ersichtlich.

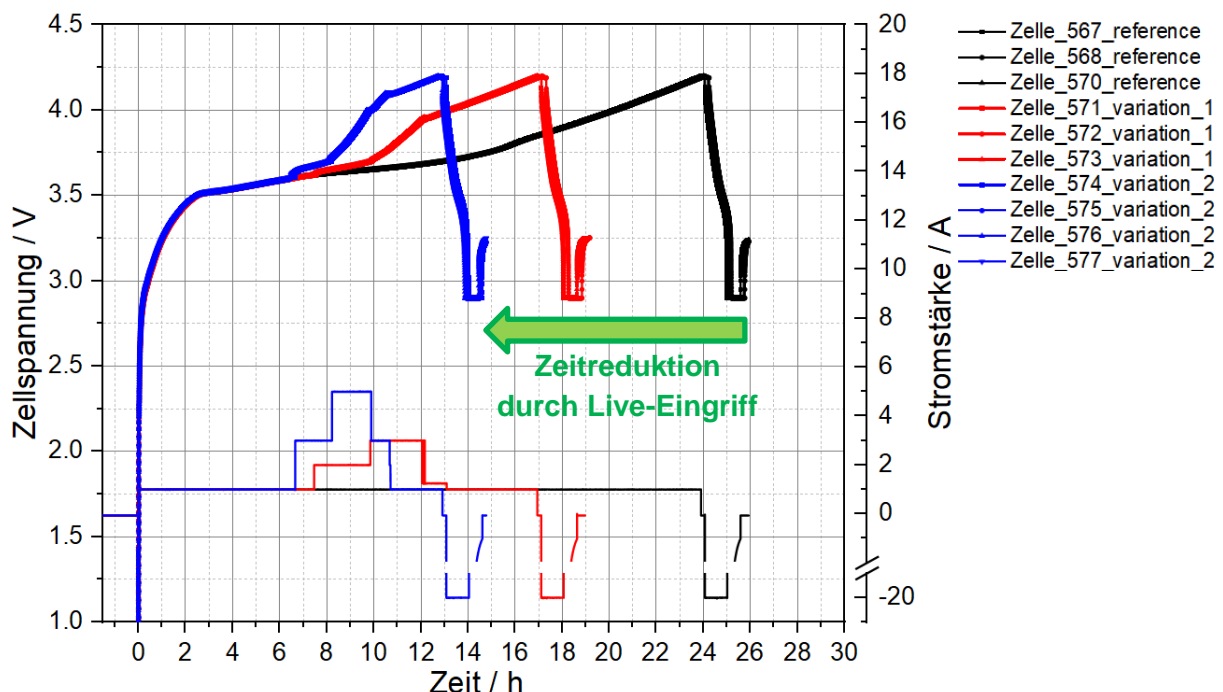


Abbildung 22: Spannungs- und Stromverläufe der Referenzformierung sowie zwei unterschiedlichen Formierstrategien mit Anwendung des Live-Eingriffs zur externen Stromänderung über der Prozesszeit

Aus Abbildung 22 wird das enorme Potential zur Zeitersparnis durch eine angepasste Änderung des Ladestroms während der Formierung erkennbar. Obwohl der Ladestrom lediglich in einem Spannungsbereich zwischen 3,6 und 4,1 V um Faktor 3 bis 5 angepasst wurde, konnte eine Verkürzung der Prozesszeit um etwa 11 Stunden (ca. 43 %) erzielt werden.

Die durchgeführte Untersuchung zur Langzeitstabilität in Abbildung 23 stellt die nutzbare Entladekapazität bzw. den aktuellen Gesundheitsstatus (SOH) von Zellen mit durchgeführter Referenzformierung und einheitlichen Zellen mit intelligenter, beschleunigter Formierungsstrategie über eine Anzahl von 1000 1C/1C-Lade-/Entladezyklen gegenüber. Beim Betrachten der Degradationsverläufe können keine negativen Auswirkungen der beschleunigten Formierung auf das zyklische Degradationsverhalten erkannt werden. Bei beiden Variationen ist eine verfügbare Restkapazität von 89,5% nach 1000 Zyklen vorhanden.

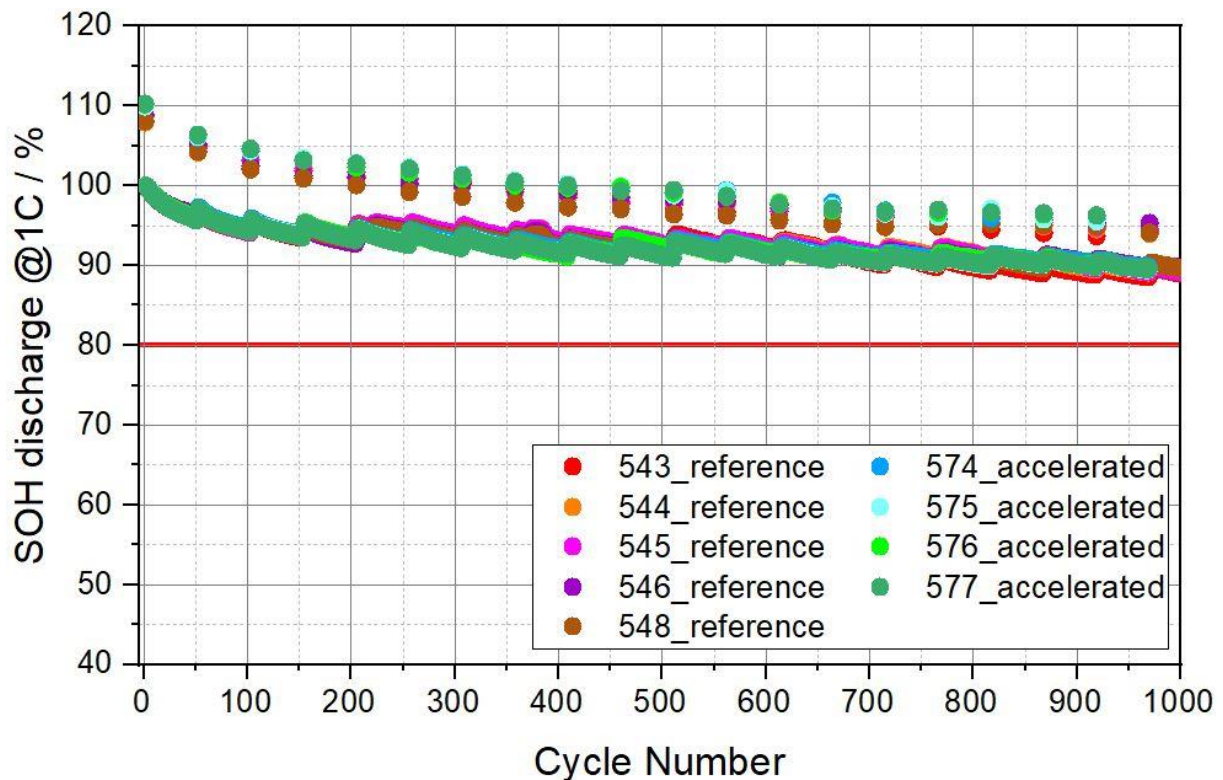


Abbildung 23: Degradationsverlauf entsprechend der Referenzformierung und intelligenter Formierungsstrategie

2. Projektmeilensteine und Abbruchkriterium

M1 nach 1. Jahr: erreicht ✓

Referenzelektroden bzw. Zellen für Referenzmessungen sind hergestellt und an die Projektpartner verteilt. Die KI- und physiko-chemischen Modelle wurden fertig konzipiert. Benchmarking-Datensatz an Referenzzellen ist erstellt und an HIU übergeben.

M2 nach 2. Jahr: erreicht ✓

Der Meilenstein 2 wurde nach Absprache mit dem Projektträger um 6 Monate verschoben. Grund dafür waren Lieferverzögerungen aus parallelen Projekten, welche sich ebenfalls auf die Software-Implementierung der KI-Erweiterung durch den Anlagenlieferanten auswirkten.

Alle Datenschnittstellen sind definiert und funktional. Dies bedeutet, dass sämtliche Schnittstellen zu den erforderlichen Instrumenten/Software (dynamische Steuerung Strom-/Spannungsgeber in der Formierkammer, Auslesen der Restgasanalyse, Auslesen Druck, Auslesen Temperatur, Datenbank, KI-Modelle) welche zur Verbesserung der Formierung in InForm notwendig sind implementiert und nutzbar sind. Die Datenqualität der über die Datenschnittstellen gewonnenen Daten ist ausreichend zum Trainieren von KI-Modellen. Die Datenqualität wird dadurch quantifiziert, dass die mit Hilfe der Datenschnittstellen gewonnenen Daten zu einem signifikant ($p < 0.05$) besserem Trainingsverlust führen als zufällig gewählte Daten mit gleicher Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion. Der Referenzdatensatz wurde nach FAIR-Kriterien publiziert.

Abbruchkriterium nach 2. Jahr: erfüllt ✓

Das Abbruchkriterium „Keine Reduktion der Formierprozessdauer im Bezug zum Benchmarkingdatensatz möglich (UAP 1.3) bzw. keine Verbesserung der Streubreite nach der Formierung.“ ist von der Verschiebung des zentralen Meilensteins 2 nicht betroffen und wurde vollständig erfüllt. Durch die pulsierte Formierung konnte die Formierprozessdauer am ZSW um etwa 48% reduziert werden (von ca. 23 h auf 12 h). Zusätzlich konnte die Streubreite der Zellqualität sowohl direkt nach der Formierung als auch in Bezug auf die Langzeitstabilität durch die gewählte Referenzformierung als auch durch die pulsierte Formierstrategie verbessert werden. (siehe UAP 2.3 + UAP 4.1)

M3 nach 2,5 Jahren: erreicht ✓

Die in UAP 1.2 entwickelte Schnittstelle zur live-Steuerung der Leistungselektronik in der Formierung ist an allen Formierkammern des ZSW umgesetzt und auf Funktionsfähigkeit überprüft. Eine Demonstration und Verifikation der optimierten Zell-Formierung wurde erfolgreich durchgeführt.

3. Zahlenmäßiger Nachweis

Die entstandenen Gesamtausgaben wurden zu entsprechenden Anteilen auf folgende Positionen verteilt:

53,09 % auf Personalausgaben

27,05 % auf sonstige allgemeine Verwaltungsausgaben/Verbrauchsmittel

19,50 % auf Investitionen zur Realisierung der Projektinhalte

0,35 % auf Dienstreisen

Insgesamt lagen die Ausgaben des ZSW um 0,40% über der bewilligten Zuwendung.

4. Notwendigkeit und Angemessenheit

Gegenstand des Projekts war die Erforschung effizienter Prozesse für die Fertigung von Lithium-Ionen-Batterien, die hohes Innovationspotenzial versprechen und einen wesentlichen Schritt zur Einführung einer massentauglichen Produktion großformatiger Lithium-Ionen-Zellen am Standort Deutschland leisten können. Das ZSW konnte als gemeinnütziges Forschungsinstitut die durchgeführten Forschungsaktivitäten nicht aus eigenen Mitteln finanzieren. Vorhandene Ressourcen wurden soweit wie möglich eingebracht und trugen zu einer Vervielfältigung der Fördermittel bei. Die in diesem Projekt durchgeführten Aktivitäten haben zudem grundlegenden und explorativen Charakter und sind im nicht wirtschaftlichen Bereich des ZSW angesiedelt.

5. Verwertbarkeit der Ergebnisse

Im Projekt InForm konnten am ZSW umfangreiche Erkenntnisse und Fortschritte im Themengebiet der beschleunigten Zellaktivierungsprozesse und deren Auswirkungen auf die Zellqualität erzielt werden.

Mit der richtigen Auswahl und von optimierten Prozessparametern kann eine erhebliche Zeitreduktion in der Zellformierung erreicht werden, ohne die Zellqualität negativ zu beeinflussen. Dadurch bietet sich ein immenses Einsparungspotential in der Herstellungskette von Li-Ionen-Batteriezellen. Neben einer Reduktion der Produktionskosten durch einen höheren Durchsatz, kann durch die frühzeitige Erkennung von Qualitätsschwankungen der Ausschuss signifikant gemindert werden.

Die erreichten Projektergebnisse dienen als Grundlage für die Übertragung einer beschleunigten Zellformierung auf weitere Zellformate und Elektrodenkonfigurationen. Durch die funktionale Implementierung der intelligenten Formierung in die Anlagentechnik des ZSW, können spezifische und industrierelevante Anwendungsmöglichkeiten direkt erprobt und umgesetzt werden.

6. Bekannt gewordener Fortschritt

Während der Durchführung des Vorhabens sind dem ZSW keine Fortschritte auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen bekannt geworden.

7. Konferenz und Veröffentlichungen

a) Poster

- [1] M. Blessing, S. Bazlen, W. Braunwarth, **Analyzing the impact of different formation strategies on large-scale format Li-ion battery cells**, Advanced Battery Power Aachen, 2023
- [2] M. Blessing, W. Braunwarth, **Analyzing the format-specific transferability of accelerated formation strategies on different types of large-scale format Li-ion battery cells**, Batterieforum Berlin, 2024

b) Veröffentlichungen

- [1] L. Merker, M. Blessing, T. Robben, T. Jennert, H. Stein, **InForm Referencedataset**, Zenodo, 2023, <https://doi.org/10.5281/zenodo.8304297>
- [2] L. Merker, M. Blessing, B. Zhang, H. Stein, **Information dense and industry scalable accelerated formation**, Advanced Intelligent Discovery (under review), 2025, pre published <https://doi.org/10.26434/chemrxiv-2025-9zf4v>